

19 FEDERAL REPUBLIC OF GERMANY

12 Published Patent Application

10 DE 195 41 266 A1

21 Application Number: 195 41 266.4

51 Int. Cl. 6:
B 01 J 10/00
B 01 F 5/06

22 Application Date: Nov. 8, 1996

43 Date laid open: May 7, 1997

71 Applicant:

Bayer AG, 51373 Leverkusen, DE;
 Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, 76133
 Karlsruhe, DE

74 Representative:

Gramm, J., Dipl.-Chem. Dr.rer.nat., 51467
 Bergisch Gladbach

72 Inventor:

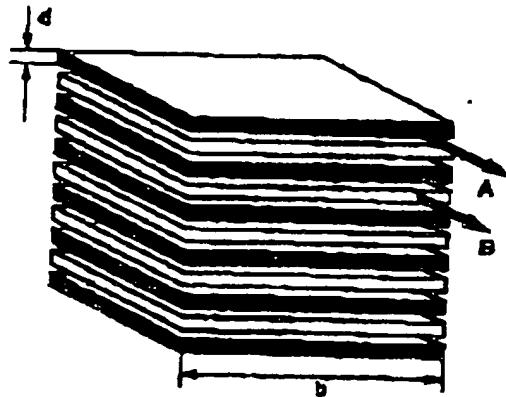
Schubert, Klaus, Dr., 76227 Karlsruhe, DE; Bier,
 Wilhelm, Dr., 76344 Eggenstein, DE; Linder,
 Gerd, Dr., 76149 Karlsruhe, DE; Hermann,
 Erhard, Dr., 51375 Leverkusen, DE; Koglin,
 Bernd, Prof. Dr., 51467 Bergisch Gladbach, DE;
 Menzel, Thomas, Dr., 40723 Hilden, DE; Maul,
 Christine, Dr., 51067 Köln, DE

56 Prior printed publications to be taken into
consideration for the evaluation of the
patentability:

DE	37 09 278 C2
DE	44 16 343 A1
DE	39 26 466 A1
DE	39 26 466 A1
DE	31 14 195 A1
WO	91 16 970 A1

54 Process and Device for the Performance of Chemical Reactions by means of a Microstructure Lamellae Mixer¹

57 In this reaction process, a minimum of two educts A, B are each subdivided by an associated system of slit-shaped micro-channels 1a, 1b, into spatially separated fluid lamellae, which then emerge into a common mixing and reaction chamber 4. The fluid lamellae have thereby a density of < 1000 µm, preferably < 100 µm, with a width/thickness ratio of at least 10. Essential thereto is that one lets the educts A, B emerge into the mixing/reaction chamber 4 as thin fluid lamellae 6a, 6b, whereby each fluid lamella 6a of an educt A is lead into the mixing/reaction chamber 4 in the direct vicinity of a fluid lamella 6b of another educt B. The neighboring fluid lamellae 6a, 6b then mix through diffusion and/or turbulence. Through that, the mixing process accelerated considerably in comparison to conventional reactions. In this way, with rapid chemical reactions one prevents to a large extent the formation of undesired by-products or secondary products.



¹ Research Center
 sic. duplicated in the original
 literal translation

Description

To perform a chemical reaction in a continuous mode of operation, the partners in a reaction must be fed continuously into a chemical reactor and brought into intimate contact, i.e., mixed well by means of a mixing element (mixer). A simple reactor is, e.g., a container with a stirrer as the mixing element. A plurality of reactions, so-called primary and secondary reactions, usually take place in the reactor at the contact of the reactants. The goal of the process is thereby to conduct the reaction and with it also the mixing such that a yield as high as possible is achieved selectively of the desired products.

The mixing quality and the influence of the mixing element on the yield of desired products is thereby to a great extent dependent on the ratio between the reaction rate determined by the reaction kinetics and the rate of mixing. If in the case of the chemical reaction one deals with slow reactions, then the chemical reaction is usually considerably slower than the mixing. The overall reaction rate and the yield for desired products is¹ then determined by the slowest step, namely the kinetics of the chemical reactions that are running, and in addition by the general mixing behavior (retention time distribution, macroscopic mixing) of the chemical reactor used. If the chemical reaction rate and the rate of mixing lie within the same order of magnitude, then one gets more complex interactions between the kinetics of the reactions and the local mixing behavior determined by turbulence in the reactor used and next to the mixing element (micromixing). If it happens that the chemical reaction rates are considerably faster than the rate of mixing, then the overall rates of the reactions taking place and the yields are basically determined by the mixing, i.e., through the local, time-dependent velocity and concentration field of the reactants, i.e., the turbulence configuration in the reactor and in the proximity of the mixing element [1].

According to the state of the art, a series of mixing elements are used for performing rapid reactions in the continuous mode of operation. Here one may differentiate between dynamic mixers like, e.g., stirrers, turbine [mixers] or rotor-stator systems, static mixers

¹ sic. *are* was probably intended

like, e.g., Kenics mixers, shish-kebab mixers' or SMV mixers and jet blenders like, e.g., jet mixers or t-mixers [2-4].

jet mixers are used with preference for the rapid mixing of the starting materials for rapid reactions with undesired subsequent or secondary reactions.

With jet or jet mixers, one of the two starting components is atomized with a high flow velocity into the other component (see Fig. 1). The kinetic energy of the jet-fed stream (B) is thereby essentially dissipated behind the nozzle, i.e., transformed into vortices through the turbulent break-up of the stream and into heat through the break-up of the vortices into smaller and smaller vortices. Comprised in the vortices are each of the starting components which in the plumes are present next to one another (macromixing). At the beginning of the turbulent break-up of the vortices, a slight mixing through diffusion indeed takes place at the edges of these initially larger structures. But the complete mixing is only achieved when the break-up of the vortices has proceeded so far that with reaching vortex dimensions on the order of the concentration microdimension (Batchelor length) [5, 6], the diffusion is rapid enough for a complete mixing of the starting components in the vortices. In addition to the material data and the geometry of the equipment, the time necessary for the complete mixing is essentially dependent on the specific energy dissipation rate¹.

The mixing processes with the mixers that are often used according to the state of art are in principal similar (with dynamic mixers and static mixers, the vortices are furthermore broken up mechanically, however, at usually considerably lower specific energy dissipation rates). This means that with the mixers utilized according to the state of the art, the time that passes until complete mixing through diffusion [is achieved] is always the vortex break-up [time]. For very fast reactions this means that one must either adjust to very high rates of energy dissipation in order to avoid undesired secondary or subsequent reactions, or with reactions with even higher reaction rates the corresponding reactions are performed not to the optimum, i.e., only with the formation of secondary or by-products.

Starting out from this state of the art, the object of the invention is in making available a process and a device in which the mixing takes place rapidly and the formation of by-products and secondary products is suppressed or reduced. Thereby one

¹literal translation

must achieve that the educts are homogeneously mixed with one another such that within the shortest time there appear no longer any local nor temporal hyperconcentration of the educts. With fluids chemically reacting with one another one must achieve a complete reaction of the fluids. The heat of reaction shall also be able to be supplied or removed effectively and as quickly as possible as needed.

The means for attaining this object according to the invention are in a process in which at least two educts A, B are each subdivided by an associated system of slit-shaped micro-channels (micro-slit channels) in a microstructure mixer, into spacially separated fluid lamellae, which then emerge at flow rates equal for each of the educts into a mixing/reaction chamber, whereby each fluid lamella of an educt A is lead into the mixing and reaction chamber in the direct vicinity to a fluid lamella of another educt B and the neighboring fluid lamellae mix with one another through diffusion and/or turbulence. Under a micro-slit channel one thereby understands a rectangular microchannel with a depth d , the width b of which $\geq 10d$ ($b/d \geq 10$), preferably $b \geq 20d$ ($b/d \geq 20$).

Laminar flow conditions are preferably maintained for the educts A, B in the microchannels. But there is nothing that stands in the way of possibly working with turbulent flows in the micro-slit channels.

An embodiment in which the fluid lamellae of the educts emerge into the mixing/reaction chamber in layers lying alternating one atop another or next to one another is particularly reliable.

The geometry of the microstructure lamellae mixer is advantageously laid out such that the thickness of the fluid lamellae d at the inlet into the mixing/reaction chamber can be adjusted to a value between $10 \mu\text{m}$ and $1000 \mu\text{m}$, preferably between $10 \mu\text{m}$ and $100 \mu\text{m}$. One preferably adjusts to a thickness d which lies in the microdimension of the concentration, such that after the emergence from the microstructure mixer, a micromixing of the components may quickly take place through diffusion, without a further vortex break-up being necessary. The width b of the fluid lamellae or of the microslit channels through which the lamellae emerge out of the microstructure lamellae mixer should thereby be as large as possible in order to keep the loss of pressure in the

¹ literal translation

² ≥ probably intended

mixer as low as possible by decreasing the wall surface per volume of educt. The width b may thereby be varied from values in the range of the order of magnitude of 0.5 mm up to large values in the range of several centimeters, and is limited only through the mechanical stability of the structural element. Crucial thereby for the mixing rate and thus the quality of mixing is a thickness d of the fluid lamellae as small as possible, but not the width b.

A development of the process according to the invention consists in that in the vicinity of a fluid lamella of an educt, a fluid lamella of a thermostated inert fluid is further fed into the mixing/reaction chamber, e.g., for heating or cooling purposes.

The process according to the invention is thus based on [the fact] that the educt flows A, B are at first convectively subdivided by means of the microstructure lamellae mixer into thin lamellae with a thickness d which then, after emerging into the mixing/reaction chamber, mix with one another through diffusion and/or turbulence.

The object of the microstructure lamellae mixer is thereby to subdivide the educt flows convectively and to create fine fluid lamellae with a characteristic thickness d, without the starting components coming into contact with one another within the mixing device. Through the equal geometric dimensioning (equal cross-section and equal length) for the microslit channels associated with each educt it is ensured that the fluid lamellae emerging from all channels associated with one educt emerge at the same flow rate. With two educts A, B, the flow rates in the microslit channels are thus the same for one educt. But the flow rates of the two educts (in relation to one another) may absolutely be different [from one another].

The device according to the invention makes it possible to essentially eliminate the time for the turbulent break-up during the mixing and by that considerably accelerate the process of mixing. One achieves the mixing behavior of a nearly ideal tube reactor by dividing the educt streams into thin fluid lamellae with the thickness d within the microstructure, without the educt streams coming into contact with one another, and through the homogeneous distribution of the educts at the output of the microstructure. With rapid reactions, undesired secondary or by-products appear to a considerably lesser extent than with mixers according to the state of the art. A main application are thus rapid reactions which have characteristic reaction times <10 s and in particular of <1 s. Under "reaction time" one usually understands the [reaction] half-life, i.e., the period of time

after the start of the reaction after which the educt concentration has dropped to half its value.

A stationary microstructure lamellae mixer with at least one mixing chamber and a preceding structural guiding part for the supply of mixing and reaction fluids (educts) proved worthwhile as apparatus. The structural guiding part is thereby composed of a plurality of plate-like elements layered on top of one another, which are passed through by microchannels running diagonally with respect to the longitudinal axis of the micromixer, whereby the channels of neighboring elements cross-over contact-free and emerge into the mixing chamber. According to the invention, this device is characterized by the following characteristics:

- a) The plate-like elements consist of thin foils into each of which are incorporated individual or a system of closely neighboring, slit-shaped microslit channels that run with alternating opposite inclinations to the longitudinal axis of the micromixer, such that when layering the foils on top of one another, a of closed channels row forms each time for the guiding of the fluids to be mixed (educts A, B).
- b) The microslit channels have a depth of $d < 1000 \mu\text{m}$, preferably $< 100 \mu\text{m}$, with wall thicknesses of the intermediate bridges and channel bases of $< 1000 \mu\text{m}$, preferably $< 100 \mu\text{m}$ and a width which is at least 10 times, preferably 20 times the depth d .
- c) Towards the fluid input side of the micromixer, the microslit channels of neighboring foils diverge such that the fluids to be mixed (educts A, B) may be injected separately.

In order to improve the mechanical stability, pins or bridges may be applied vertically off the channel bases, which are rigidly connected to the channel bases and support them against one another.

Alternately, an intermediate foil is intercalated between each two foils with the inclined microslit channels diverging towards the fluid input side, which [intermediate foil] has microslit channels running perpendicularly to the longitudinal axis of the micromixer and serves in guiding through a cooling or heating agent.

According to a further alternative, a micro-heat-transfer [system] is connected to the mixing chamber. But the mixing chamber may itself be designed as micro-heat-transfer [system] which is connected directly to the structural guiding part.

With the device according to the invention, the fluids to be mixed are subdivided in rows and staggered into thin, neighboring fluid lamellae which, when brought together at the entrance into the mixing chamber, fill out a common, correspondingly tightly limited volume and by that can mix through and through in the fastest and shortest way. The formation of extremely thin fluid lamellae allows for a few hundred to thousand lamellae lying above or next to one another within a height of 1 cm, and these fluid lamellae are alternately supplied with educt A and educt B.

The device according to the invention makes possible the mixing of two or more fluids. If fluids (educts) chemically reacting with one another are mixed, then the heat of reaction arising (exothermic reactions) or needed (endothermic reactions) may be dissipated or supplied via the connected micro-heat-transfer [system].

The following advantages may be achieved when utilizing the device according to the invention:

- Improvement of the yield, selectivity and product quality with known reactions
- Preparation of products with new profile of properties (e.g., higher [degrees of] purity)
- Miniaturizing of reactors and mixers, possibly in combination with heat exchangers
- Improvement of the safety standard for exothermic reactions by decreasing the hold-up [time] and possibly by reducing the dimensions of the microslit channels to below the put-out distance* (improved security against back-firing!)
- The contact surface between [the] fluid and the channel wall is minimized through the slit-shaped design of the microchannels (channel width b » channel depth d). In the case of a microstructure lamellae mixer, in particular for a channel depth $d < 100 \mu\text{m}$, this leads to clearly lower pressure losses through friction than in a microstructure mixer for which the microslit channels lie in the order of magnitude of the depth d (approximately square cross-section)

* literal translation

- By generating fluid lamellae in the device according to the invention in place of a larger number of fluid filaments⁹ separated by walls, the back-mixing which may take place in the space between the individual fluid filaments¹⁰ right when entering the mixing space because of local vortices at the orifices is reduced and with it the formation of by-products.
- Furthermore, the danger of clogging is reduced considerably with respect to the micromixer with many, nearly square microchannels.

In the following, the invention is explained more closely by means of examples of embodiment and drawings. [The figures] show

Fig. 1 the mixing of two educts A, B in a flat jet mixer or tube reactor (state of the art)

Fig. 2 the schematic representation of fluid lamellae lying above one another

Fig. 3 the basic construction of a preferred embodiment of the microstructure lamellae mixer for two educts A, B with symmetric flow passages,

Fig. 4 the mixing of the fluid lamellae associated with the educts A, B entering the mixing and reaction chamber from the microstructure lamellae mixer,

Fig. 5a and **5b** an embodiment in which the spacial arrangement of the fluid lamellae associated to the educts A, B when entering the mixing/reaction chamber is characterized by alternating layers lying above or next to one another.

Fig. 6 a flow schematic of an apparatus for the investigation of chemical reactions which run by using the device according to the invention

Fig. 7 Results for the azo coupling reaction of α -naphthol with sulfobenzene diazonium salt when using a microstructure lamellae mixer, in comparison with a microstructure mixer with [a] nearly square channel cross-section and a conventional and flat jet reactor

Fig. 8a a plurality of stacking foils as structural elements for the microstructure lamellae mixer, with one microslit channel each per foil

Fig. 8b and **8c** two views of a structural guiding element [built] from foils according to **Fig. 8a**

Fig. 8d schematically [shows] the flow pattern in a microstructure lamellae mixer

⁹ literal translation

¹⁰ literal translation

Fig. 9a and **9b** schematically [shows] a microstructure lamellae mixer with [a] structural guiding element that may be cooled or heated.

Fig. 10a a section through a microstructure lamellae mixer, attached to the mixing chamber of which there is a heat-transfer [system]

Fig. 10b a microstructure lamellae mixer with a mixing chamber designed as heat-transfer [system].

According to **Fig. 1**, two educts A, B reacting with one another are fed into a flat jet mixer or flat jet nozzle reactor according to the state of the art. Here, the educt B is jet-blasted with a speed different [from A] into the educt stream A supplied through the concentric annular space between the jet nozzle and the wall of the reactor. It comes to an intensive mixing (formation of vortices) and the immediate start of the chemical reaction between the educts or reactants A, B.

Fig. 2 shows the principle at the basis of the invention of fluid lamellae layered alternating on top of one another. A lamellae of the fluid B follows each time a lamellae consisting of the fluid A. The thickness d of the lamellae is thereby small with respect to their width b. The fluids A, B may consist of a gas or a fluid and in the following are designated as [the] educts A, B.

An embodiment of a microstructure lamellae mixer or reactor corresponding to the device according to the invention is represented schematically in **Fig. 3**. The basic construction of this mixer/reactor is based on [the fact] that various layers of the plates, with microslit channels running diagonally, are stacked vertically on top of one another in a sandwich-type construction.

Each of the plates with microslit channels 1a is followed by a plate with the microslit channels 1b, i.e., two plates in a stack arranged directly on top of one another are each provided with a system of microslit channels 1a, 1b, whereby the microslit channel systems of subsequent plates form with one another an angle α and are arranged symmetrically to the horizontal axis in **Fig. 3**, i.e., as a mirror image of one another. The plates have, e.g., a thickness of 100 μm . The slit channels have, e.g., a depth d of 70 μm and a width b > 700 μm .

When seen from the center of the image["], the systems of microslit channels 1a in **Fig. 3** running diagonally upwards end on the left side in a distributor chamber 3a, to which a reactant or an educt A may be supplied. Analogously, the systems of microslit channels 1b running diagonally downwards end on the left side in a distributor chamber 3b, to which an educt B (reactant) may be supplied. Without intersecting, both systems of microslit channels end on the right side in a common mixing/reaction chamber 4. The symmetrically mirroring arrangement of the microslit channels 1a, 1b is not absolutely necessary. The microslit channels 1b may also have, e.g., another inclination with respect to the horizontal axis than the microslit channels 1a.

Important, however, is that all of the microslit channels of one system are equal from a flow-technological point of view, i.e., that the microslit channels 1a have all the same flow resistance. The same condition is valid for the flow resistance of the microslit channels 1b, but where the flow resistances of the two systems of microchannels 1a, 1b may be different (with respect to one another). The same flow resistance may be achieved in that the length and the cross-section for all microslit channels 1a are the same.

The educt, e.g., a reactant in the form of a gas, supplied to a distributor chamber 3a, 3b is distributed over the microslit channels 1a, 1b, respectively. The combination of both reactants occurs when entering into the mixing/reaction chamber and described more closely in the following by means of the **Fig. 4** and **5**. In **Fig. 4**, the orifice cross-section of the microstructure lamellae mixer is represented in perspective.

In the most upper layer or plate, the microslit channels 1a, associated, e.g., to the educt A, and in the following layer or plate lying underneath, the microslit channels 1 of the educt B emerge into the mixing/reaction chamber. Hereto follows again a layer or plate with the microslit channels belonging to the educt A, etc. Also represented schematically in **Fig. 4** is how the fluid streams guided in the microslit channels enter the mixing/reaction chamber as fluid lamellae 6a, 6b and mix with one another with an increasing distance from the entrance. The mixing thereby takes place through diffusion and/or turbulence, whereas laminar flow conditions usually predominate in the microslit channels. The reaction of the educts A, B also starts simultaneously with the mixing. The product of the reaction is removed at the end of the mixing/reaction chamber (see **Fig. 3**).

["] this description would be dependent on which way one holds the page - in this case "landscape" is intended.

In Fig. 5 it is again shown in what spacial sequence the educts A, B reach the mixing/reaction chamber at the cross-section op the orifice. Each layer with fluid lamellae of the educt A thus borders against a layer of the fluid lamellae of the educt B. The arrangement may naturally also be rotated by 90°, such that the layers lie next to one another.

The microstructure lamellae mixer according to Fig. 3 may also be modified such that three or more educts are each separated into separate systems of microslit channels, which are then brought together in the mixing/reaction chamber. An interesting variation from a process-technological point of view consists in that the third educt consists of a thermostated inert fluid. The fluid lamellae are then guided into the microstructure lamellae mixer such that for heating or cooling purposes, a fluid lamella of the thermostated inert fluid is fed into the mixing/reaction chamber in the vicinity to a fluid lamella of an educt.

A practical embodiment of the microstructure lamellae mixer which has proven itself in particular is described in the following by means of the Fig. 8a through 10b.

The foils 1 and 2 according to Fig. 8a have a thickness of 100 µm. The foil type 1 is run through by one [individual] or a system of preferably parallel, closely adjacent microslit channels running at an angle to the longitudinal axis of mixing 3, which starting from the left back, form an acute angle $+\alpha$ with this axis 3 and emerge in the central region of the longitudinal front side of the foil. The foil type 2 is run through in the same way by microslit channel 1b; but in this case, the angle between the longitudinal axis of the groove and the longitudinal axis of the mixer is $-\alpha$; i.e., the microslit channel runs from the right back to the central region of the longitudinal front side of the foil. However, the value of the angle must not be the same. The microslit channels 1a, 1b may be created, e.g., with diamond profiling [tools] and preferably have a width $b > 700 \mu\text{m}$ and a depth d of 70 µm. The thickness of the channel bases 5a, 5b is 30 µm.

In the case of broad microslit channels it may be useful to support the foils or channel bases 5a, 5b against one another through perpendicularly arranged, continuous pins 15 or bridges with small transverse dimensions, which are soldered to the channel bases. In this way, the microslit channels 1a, 1b may be designed as broad as desired without compromising the mechanical stability.

Fig. 8b and 8c show how, in order to produce a structural guiding part 6, the foil types 1 and 2 are placed in alternation on top of one another, are provided with a top and a bottom cover plate 7a, 7b, and are bonded together, e.g., by means of diffusion welding into a homogeneous, vacuum-tight and pressure-resistant microstructure element.

These microslit channels 1a, 1b form a common block having, e.g., a square cross-section, with a thickness of a few tens up to a few hundreds of orifices per cm² which border the common mixing chamber 4. **Fig. 8c** shows the structural guiding part 6 as seen from the feed side for the fluids A and B. As may be gathered from this and from the top view according to **Fig. 8d**, the channels 1a, 1b running at an angle to the longitudinal axis 3 diverge starting at the mixing chamber 4, alternating towards the entry side of the fluid such that the fluids A and B can be supplied separately to the structural guiding part 6, from one entry chamber or distributor chamber 3a and 3b each. After emerging from the structural guiding part 6, the fine fluid lamellae 6a, 6b of the fluids A and B are intimately mixed with one another and form in the mixer chamber 4 one combined stream C (see also **Fig. 4**).

The **Fig. 9a** and **9b** show a variation in which intercalated between two foil types 1 and 2, and between the foils and the cover plates 7a, 7b, there are intermediate foils 8 which have microslit channels 9 running perpendicularly to the longitudinal axis 3, for passing through a cooling or heating agent. Through that one may influence the time of mixing and the reaction rate of the fluids A and B.

In **Fig. 10a**, structural guiding part 6 corresponding to the **Fig. 8a** and **8b** is represented as a section, with mixing chamber 4 connected. Furthermore connected to this mixing chamber there is a heat-transfer [system] 10 which similarly to the variation according to **Fig. 9a** and **9b**, is traversed by channels 11a running perpendicularly to the flow direction C, for supplying or removing the reaction heat to or from the channels 11b.

In **Fig. 10b**, the heat-transfer [system] 12 is connected directly to the structural guiding part 13. The separation through distancing foils 14 is thereby made such that each two channels 13a, 13b for the fluids A, B feed into one common partial mixing space 12a of the heat-transfer [system], whereby the partial mixing space 12a border foils 12b which have channels 12c running perpendicularly to the direction of flow C. These channels 12c carry a cooling or heating agent by means of which heat relating to the mixing and reactions zones may be removed or supplied.

Example

The azo coupling reaction of α -naphthol with sulfobenzene diazonium salt is used in the literature for evaluating the mixing behavior of various mixing devices [2, 8, 9]. This reaction corresponds to a reaction scheme consisting of the main reaction and an undesired, competing subsequent reaction in which the product formed via the main reaction reacts with unreacted educt to form an undesired subsequent product. The subsequent product may be analyzed in an easy way via absorption spectra. The quality of the mixing process is thereby evaluated through the selectivity of the undesired subsequent product S, X_s. The more S is formed, the poorer is the mixing.

The investigations for performing rapid chemical reactions by means of microstructure mixing was done in the equipment represented in Fig. 6. It consists of the supply containers 5 for the starting components A and B, metering and control devices 6, filters 7 for protecting the microstructure mixer against plugging, the microstructure mixer 8 and the receiving container 9 for the product mixture. The microstructure lamellae mixer has slit channels with a depth d of 70 μm and a width b of 4 mm. The microstructure lamellae mixer was thereby compared with a microstructure mixer with rectangularly shaped microchannels which generate free jets¹² with a width of 100 μm and a thickness of 70 μm . A conventional flat jet nozzle was further included in the comparison. The jets in the two microstructure mixers were arranged such that the components A and B emerge from the mixer in layers arranged alternating on top of one another.

Volumetric flow conditions were adjusted of $\alpha = V_A/V_B$ of 10. One thereby operated at performance coefficients of $\psi > 10^2$. The reaction kinetics data and the specifications for the utilization of the model reactions may be gathered from the literature [2, 8, 9, 10].

A stoichiometric ratio of 1.05 and a constant starting naphthol concentration of 1.37 mol/m³ were set. The performance coefficient ψ is calculated as follows:

$$\psi = (\Delta p_{Naph.} \cdot V_{Naph.} + \Delta p_{Sub.} \cdot V_{Sub.}) / (k_2 \cdot c_{all} \cdot \eta \cdot (V_{Naph.} + V_{Sub}))$$

with

¹² literal translation

Δp_{Naph} loss of energy due to impact [for the] naphthol solution in the mixer

Δp_{Sulf} loss of energy due to impact [for the] sulfanilic acid solution in the mixer

V_{Naph} volumetric flow [of the] naphthol solution

V_{Sulf} volumetric flow [of the] sulfanilic acid solution

k_2 specific reaction rate of the undesired subsequent reaction

c_0 starting concentration of naphthol

η dynamic viscosity

In Fig. 7, the selectivity of the undesired subsequent product X_s is plotted against the performance coefficient ψ .

It emerges that considerably less undesired subsequent product is formed when using the microstructure lamellae mixer and the microstructure mixer for the volumetric flow ratio of $\alpha = 10$ at an equal performance coefficient, than when using a conventional flat jet nozzle. This finding is entirely surprising if one starts out from the existing teaching that the intensity of mixing is determined solely by the performance coefficient and the material data. The mixing behavior of the microstructure lamellae mixer is thereby approximately equal to that of the microstructure mixer, whereby essential advantages of the microstructure lamellae mixer consist in that the pressure loss through friction is smaller by at least a factor of 3 and, based on a lower number of fluid elements, a lesser back-mixing through the turbulence at the entrance into the mixing/reaction chamber.

References

[1] Brodkey, R.S. (ed.)

Turbulence in Mixing Operations

Theory and Application to Mixing and Reaction

Academic Press, Inc, New York, San Francisco, London, 1975

[2] Tebel, K.H., May, H.-O.

Der Freistrahlrohrreaktor - Ein effectives Reaktordesign zur Unterdrückung von Selektivitätsverlusten durch schnelle, unerwünschte Folgereaktionen¹³

Chem.-Ing.-Tech. MS 1708/88, Synopsis in Chem.-Ing.-Tech. 60, 1988

[3] Zehner, P.; Bittins, K.

Düsengekturen¹⁴

Fortschr. Verf. Technik 23, 1985, 373

¹³ *The Free-Jet Tube Reactor (lit.) - An Effective Reactor Design for the Suppression of Selectivity Losses Due to Rapid, Undesired Subsequent Reactions*

¹⁴ *Jet Reactors*

[4] Tosun, G.
A Study of Micromixing in T-Mixers
Ind. Eng. Chem. Res. 26, 1987, 1184

[5] Batchelor, G.K.
Small-scale Variation of Convected Quantities Like Temperature in Turbulent Fluid
J. Fluid Mech. 5, 1959, 113

[6] Baldygs, J.; Bourne, J.R.
Micromixing in Inhomogeneous Turbulence
Chem. Eng. Sci. 43, 1988, 107

[7] Schmidt, P.; Caesar, C.
*Mikroreaktor zur Durchführung chemischer Reaktionen mit starker Wärmetönung*¹⁵
and Patent Application DE 39 26 466 A1

[8] Brodkey, R.S.
Fundamentals of Turbulent Motion, Mixing and Kinetics
Chem. Eng. Commun. 8, 1981, 1

[9] Bourne, J.R.; Hilber, C.; Tovstiga, G. -
Kinetics of the Azo Coupling Reactions Between 1-Naphthol and Diazotized Sulphanilic Acid
Chem. Eng. Commun. 37, 1985, 293

[10] Bourne, J.R.; Kozicki, F.; Rys, P.
Mixing and Fast Chemical Reaction I: Test Reactions to Determine Segregation
Chem. Eng. Sci. 36, 1981, 1643

Patent Claims

1. Process for performing chemical reactions between reaction partners (educts) in the form of gas and/or fluids, in which at least two educts A, B are each subdivided by an associated system of micro-channels into spacially separated microstreams, which then emerge into a common mixing/reaction chamber, characterized in that the microstreams in the form of fluid lamellae of the educts A, B coming from slit-shaped micro-channels (micro-slit channels) are allowed to emerge into a mixing/reaction chamber (4) at flow rates equal for each of the educts, whereby each fluid lamella of an educt A is lead into the mixing and reaction chamber (4) in the direct vicinity to a fluid lamella of another educt B and the neighboring fluid lamellae mix with one another through diffusion and/or turbulence
2. Process according to claim 1, characterized in that laminar flow conditions are maintained in the microchannels (1a, 1b) for the educts A, B.
3. Process according to claim 1 through 2, characterized in that the fluid lamellae of the educt A, B emerge into the reaction chamber (4) in thin layers lying alternating on top of or next to one another.

¹⁵ *Microreactor for Performing Chemical Reactions with a Strong Heat Tonality*

4. Process according to claim 1 through 3, characterized in that the thickness of the fluid lamellae when entering the mixing/reaction chamber is adjusted to a value between 10 µm and 1000 µm, preferably between 10 and 100 µm.

5. Process according to claim 1 through 4, characterized in that a fluid lamella of a thermostated inert fluid is additionally fed into the mixing/reaction chamber (4) in the vicinity of a fluid lamella of an educt.

6. Microstructure lamellae mixer with at least one mixing chamber and one preceding structural guiding part for the supply to the mixing chamber of fluids to be mixed, whereby the structural guiding part is composed of a plurality of plate-like elements layered on top of one another, which are passed through by channels running diagonally with respect to the longitudinal axis of the micromixer, and whereby the channels of neighboring elements cross-over contact-free and emerge into the mixing chamber, characterized by the following characteristics:

a) The plate-like elements consist of thin foils (1, 2) into each of which are incorporated individual or a system of closely neighboring, slit-shaped microslit channels (1a, 1b) that run with alternating opposite inclinations to the longitudinal axis (3) of the micromixer, such that when layering the foils (1, 2) on top of one another, one channel each or a row each (1a and 1b) forms of closed channels for the guiding of the fluids to be mixed (educts A, B);

b) The microslit channels (1a, 1b) have a depth of $d < 1000 \mu\text{m}$, preferably $< 100 \mu\text{m}$, a width b which is at least 10 times the respective depth d [that was] selected (i.e., $b/d \geq 10$) and a wall thicknesses of the channel bases (5a, 5b) of $< 1000 \mu\text{m}$, preferably $< 100 \mu\text{m}$:

c) the orifices of the channels (1a, 1b) bordering the mixing chamber (4) lie in alignment above one another, whereby the channels (1a, 1b) of neighboring foils diverge towards the fluid-entry side (3a, 3b) of the micromixer such that the mixing fluids (A, B) may be fed separately.

7. Microstructure lamellae mixer according to claim 6, characterized in that the channel bases (5a, 5b) are supported against one another at regular intervals through pins (15) rigidly connected to the channel bases (5a, 5b).

8. Microstructure lamellae mixer according to claim 6, characterized in that an intermediate foil (8) is intercalated between each two foils (1, 2) with the inclined

microslit channels diverging towards the fluid input side, which [intermediate foil] has microslit channels (9) running perpendicularly to the longitudinal axis (3) of the micromixer and serves in guiding through a cooling or heating agent.

9. Microstructure lamellae mixer according to claim 6 or 7, characterized in that a micro-heat-transfer [system] (10) is connected to the mixing chamber (4).

10. Microstructure lamellae mixer according to claim 6 or 7, characterized in that the mixing chamber is designed as micro-heat-transfer [system], which is connected directly to the structural guiding part 13.

Hereto 12 page(s) of drawings

(19) BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

Offenlegungsschrift

(10) DE 195 41 266 A 1

(51) Int. Cl. 6:
B01J 10/00
B 01 F 5/06

(71) Anmelder:

Bayer AG, 51373 Leverkusen, DE;
Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, 76133
Karlsruhe, DE

(74) Vertreter:

Gremm, J., Dipl.-Chem. Dr.rer.nat., 51467 Bergisch
Gladbach

(21) Aktenzeichen: 195 41 266.4
(22) Anmeldetag: 6. 11. 95
(23) Offenlegungstag: 7. 5. 97

(22) Erfinder:

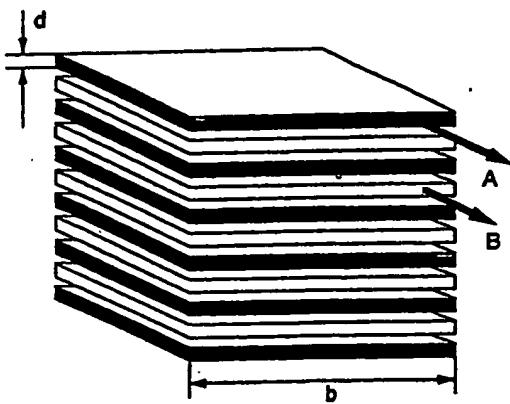
Schubert, Klaus, Dr., 76227 Karlsruhe, DE; Bier,
Wilhelm, Dr., 76344 Eggenstein, DE; Linder, Gerd,
Dr., 76149 Karlsruhe, DE; Herrmann, Erhard, Dr.,
51375 Leverkusen, DE; Koglin, Bernd, Prof. Dr., 51467
Bergisch Gladbach, DE; Menzel, Thomas, Dr., 40723
Hilden, DE; Maul, Christine, Dr., 51087 Köln, DE

(58) Für die Beurteilung der Patentfähigkeit
in Betracht zu ziehende Druckschriften:

DE 37 09 278 C2
DE 44 16 343 A1
DE 39 26 488 A1
DE 39 28 488 A1
DE 31 14 195 A1
WO 91 16 970 A1

(54) Verfahren und Vorrichtung zur Durchführung chemischer Reaktionen mittels eines
Mikrostruktur-Lamellenmixers

(57) Bei dem Reaktionsverfahren werden mindestens zwei Edukte A, B durch eine Ihnen jeweils zugeordnete Schar von schlitzförmigen Mikrokanälen 1a, 1b in räumlich getrennte Fluidlamellen aufgeteilt, die anschließend in einen gemeinsamen Misch- und Reaktionsraum 4 austreten. Die Fluidlamellen haben dabei eine Dicke < 1000 µm, vorzugsweise < 100 µm, bei einem Breiten/Dickenverhältnis von mindestens 10. Wesentlich ist dabei, daß man die Edukte A, B als dünne Fluidlamellen 6a, 6b in den Misch/Reaktionsraum 4 austreten läßt, wobei jede Fluidlamelle 6a eines Edukts A in unmittelbarer Nachbarschaft zu einer Fluidlamelle 6b eines anderen Edukts B in den Misch/Reaktionsraum 4 geführt wird. Die benachbarten Fluidlamellen 6a, 6b vermischen sich dann anschließend durch Diffusion und/oder Turbulenz. Dadurch wird der Vermischungsvorgang im Vergleich zu konventionellen Reaktoren wesentlich beschleunigt. Bei schnellen chemischen Reaktionen wird auf diese Weise die Bildung von unerwünschten Neben- bzw. Folgeprodukten weitgehend verhindert.



DE 195 41 266 A 1

DE 195 41 266 A 1

Beschreibung

Zur Durchführung einer chemischen Reaktion in kontinuierlicher Fahrweise müssen die Reaktionspartner kontinuierlich einem chemischen Reaktor zugeführt werden und mit Hilfe eines Mischorgans (Mischers) innig in Kontakt gebracht, d. h. gut vermischt werden. Ein einfacher Reaktor ist z. B. ein Behälter mit einem Rührer als Mischorgan. Im Regelfall laufen im Reaktor bei Kontakt der Reaktanden mehrere Reaktionen, sogenannte Haupt- und Nebenreaktionen ab. Dabei ist es Ziel des Verfahrensingenieurs, die Reaktionen und damit auch die Vermischung so zu führen, daß selektiv eine möglichst hohe Ausbeute an erwünschtem Produkt erzielt wird.

Die Güte der Vermischung und der Einfluß des Mischorgans auf die Ausbeute an erwünschtem Produkt hängt dabei in großem Maße vom Verhältnis der durch die Reaktionskinetik gegebenen chemischen Reaktionsgeschwindigkeit zur Mischgeschwindigkeit ab. Handelt es sich bei den chemischen Reaktionen um langsame Reaktionen, so ist die chemische Reaktion in der Regel wesentlich langsamer als die Vermischung. Die Brutto-Reaktionsgeschwindigkeit und die Ausbeute an erwünschtem Produkt wird dann durch den langsamsten Schritt, nämlich die Kinetiken der ablaufenden chemischen Reaktionen, und dazu durch das globale Vermischungsverhalten (Verweilzeitverteilung, Makromischung) des verwendeten chemischen Reaktors bestimmt. Liegen die chemischen Reaktionsgeschwindigkeiten und die Vermischungsgeschwindigkeit in der gleichen Größenordnung, so kommt es zu komplexen Wechselwirkungen zwischen den Kinetiken der Reaktionen und dem lokalen, durch die Turbulenz bestimmten Vermischungsverhalten im verwendeten Reaktor und am Mischorgan (Makromischung). Tritt der Fall ein, daß die chemischen Reaktionsgeschwindigkeiten wesentlich schneller sind als die Mischgeschwindigkeit, so werden die Brutto-Geschwindigkeiten der ablaufenden Reaktionen und die Ausbeuten im wesentlichen durch die Vermischung, d. h. durch das lokale, zeitabhängige Geschwindigkeits- und Konzentrationsfeld der Reaktanden, d. h. die Turbulenzstruktur im Reaktor bzw. am Mischorgan bestimmt [1].

Nach dem Stand der Technik werden zur Durchführung schneller Reaktionen in Konti-Fahrweise eine Reihe von Mischorganen eingesetzt. Man kann hier unterscheiden zwischen dynamischen Mischern, wie z. B. Rührer, Turbinen oder Rotor-Stator-Systemen, statischen Mischern, wie z. B. Kenics-Mischern, Schaschlik-Mischern oder SMV-Mischern und Strahlmischern, wie z. B. Düsenmischern oder T-Mischern [2-4].

Bevorzugt werden zur schnellen Vermischung der Ausgangsstoffe bei schnellen Reaktionen mit unerwünschten Folge- bzw. Nebenreaktionen Düsenmischer eingesetzt.

Bei Strahl- bzw. Düsenmischern wird eine der beiden Ausgangskomponenten mit hoher Strömungsgeschwindigkeit in die andere Komponente verdüst (s. Fig. 1). Dabei wird die kinetische Energie des eingedüsten Strahles (B) im wesentlichen hinter der Düse dissipiert, d. h. durch turbulenten Zerfall des Strahles in Wirbel und weiteren turbulenten Zerfall der Wirbel in immer kleinere Wirbel in Wärme umgewandelt. In den Wirbeln sind jeweils die Ausgangskomponenten enthalten, die in den Fluidballen nebeneinander vorliegen (Makromischung). Zwar tritt an den Rändern dieser zunächst größeren Strukturen zu Beginn des turbulenten Wirbelzer-

falls eine geringe Mischung durch Diffusion auf. Die vollständige Vermischung wird jedoch erst erreicht, wenn der Wirbelzerfall soweit fortgeschritten ist, daß mit Erreichen von Wirbelgrößen in der Größenordnung des Konzentrations-Mikromafes (Batchelor-Länge) [5, 6] die Diffusion schnell genug ist, um die Ausgangskomponenten in den Wirbeln vollständig miteinander zu vermischen. Die für die vollständige Vermischung nötige Mischzeit hängt neben den Stoffdaten und der Geometrie der Apparatur im wesentlichen von der spezifischen Energiedissipationsrate ab.

Die Vermischungsvorgänge bei den häufig zur Anwendung kommenden Mischern nach dem Stand der Technik sind prinzipiell ähnlich (bei dynamischen Mischern und Statikmischern werden die Wirbel noch zusätzlich mechanisch zerteilt bei allerdings in der Regel wesentlich niedrigeren spezifischen Energiedissipationsraten). Dies bedeutet, daß bei den nach dem Stand der Technik verwendeten Mischern bis zur vollständigen Vermischung durch Diffusion immer die Zeit des Wirbelzerfalls vergeht. Für sehr schnelle Reaktionen bedeutet dies, daß entweder sehr hohe Energiedissipationsraten eingestellt werden müssen, um unerwünschte Neben- und Folgereaktionen zu vermeiden oder bei Reaktionen mit noch größeren Reaktionsgeschwindigkeiten die entsprechenden Reaktionen nicht optimal, d. h. nur unter Neben- bzw. Folgeproduktbildung, durchgeführt werden.

Ausgehend von diesem Stand der Technik besteht die Aufgabe der Erfindung in der Bereitstellung eines Verfahrens und einer Vorrichtung, bei der die Mischung schnell erfolgt und die Bildung von Folge- bzw. Nebenprodukten unterdrückt bzw. reduziert wird. Dabei muß erreicht werden, daß die Edukte homogen miteinander gemischt werden, so daß innerhalb kürzester Zeit keine örtlichen und keine zeitlichen Überkonzentrationen der Edukte mehr auftreten. Bei chemisch miteinander reagierenden Fluiden soll eine vollständige Reaktion der Fluide erzielt werden. Bei Bedarf sollte auch die Reaktionswärme effektiv und schnellstmöglich ab- oder zugeführt werden können.

Diese Aufgabe wird erfundungsgemäß durch ein Verfahren gelöst, bei dem mindestens zwei Edukte A, B durch eine ihnen zugeordnete Schar von schlitzförmigen Mikrokanälen (Mikroschlitzkanäle) in einem Mikrostruktur-Mischer in räumlich getrennte Fluidlamellen aufgeteilt werden, die dann mit für das jeweilige Edukt gleichen Strömungsgeschwindigkeiten in einen Misch-/Reaktionsraum austreten, wobei jede Fluidlamelle eines Eduktes A in unmittelbarer Nachbarschaft zu einer Fluidlamelle eines anderen Eduktes B in den Misch- und Reaktionsraum geführt wird und sich die benachbarten Fluidlamellen durch Diffusion und/oder Turbulenz miteinander vermischen. Unter einem Mikroschlitzkanal wird dabei ein rechteckförmiger Mikrokanal mit einer Tiefe d verstanden, dessen Breite $b > = 10d$ ($b/d > = 10$), vorzugsweise $b > = 20d$ ($b/d > = 20$) beträgt.

Vorzugsweise werden in den Mikroschlitzkanälen laminare Strömungsbedingungen für die Edukte A, B aufrechterhalten. Es steht jedoch nichts im Wege, gegebenenfalls mit turbulenten Strömungen in den Mikroschlitzkanälen zu arbeiten.

Besonders bewährt hat sich eine Ausführungsform, bei der die Fluidlamellen der Edukte A, B in abwechselnd übereinanderliegenden oder nebeneinanderliegenden Schichten in den Misch-/Reaktionsraum austreten.

Die Geometrie des Mikrostruktur-Lamellenmischers ist in vorteilhafter Weise so ausgelegt, daß die Dicke der Fluidlamellen d am Eintritt in den Misch-/Reaktionsraum auf einen Wert zwischen $10 \mu\text{m}$ und $1000 \mu\text{m}$, vorzugsweise zwischen $10 \mu\text{m}$ und $100 \mu\text{m}$, eingestellt werden kann. Vorzugsweise wird eine Dicke d eingestellt, die in der Größenordnung des Konzentrations-Mikromaßes liegt, so daß nach Austritt aus dem Mikrostruktur-Mischer, ohne daß ein weiterer Wirbelzerfall nötig ist, die Mikromischung der Komponenten schnell durch Diffusion erfolgen kann. Die Breite b der Fluidlamellen bzw. der Mikroschlitzkanäle, über welche die Lamellen aus dem Mikrostruktur-Lamellenmischer austreten, sollte dabei möglichst groß sein, um durch Verringerung der Wandfläche pro Eduktvolumen den Druckverlust im Mischer möglichst gering zu halten. Die Breite b kann dabei von Werten im Bereich in der Größenordnung von $0,5 \text{ mm}$ bis zu großen Werten im Bereich von mehreren Zentimetern variieren und ist im wesentlichen nur durch die mechanische Stabilität des Bauteils begrenzt. Für die Mischgeschwindigkeit und somit Mischgüte ist dabei eine möglichst geringe Dicke d der Fluidlamellen entscheidend, dagegen nicht die Breite b .

Eine Weiterentwicklung des erfundsgemäßes Verfahrens besteht darin, daß in Nachbarschaft zu einer Fluidlamelle eines Eduktes zusätzlich eine Fluidlamelle eines temperierten inerten Fluids, z. B. zu Heiz- oder Kühlzwecken, in den Misch-/Reaktionsraum eingespeist wird.

Das erfundsgemäßes Verfahren beruht also darauf, daß die Eduktströme A, B zunächst mittels des Mikrostruktur-Lamellenmischers konvektiv in dünne Lamellen mit einer Dicke d aufgeteilt werden, die sich dann nach dem Austritt im Misch-/Reaktionsraum durch Diffusion und/oder Turbulenz miteinander vermischen.

Die Aufgabe des Mikrostruktur-Lamellenmischers ist es dabei, die Eduktströme konvektiv zu zerteilen und feine Fluidlamellen mit einer charakteristischen Dicke d zu erzeugen, ohne daß die Ausgangskomponenten innerhalb der Mischer-Vorrichtung miteinander in Kontakt kommen. Durch gleiche geometrische Dimensionierung (gleicher Querschnitt und gleiche Länge) für die jeweils einem Edukt zugeordneten Mikroschlitzkanäle wird sichergestellt, daß aus allen jeweils einem Edukt zugeordneten Kanälen die Fluidlamellen mit gleichen Strömungsgeschwindigkeiten austreten. Bei zwei Edukten A, B sind also die Strömungsgeschwindigkeiten in den Mikroschlitzkanälen jeweils für ein Edukt untereinander gleich. Die Strömungsgeschwindigkeiten der beiden Edukte (im Verhältnis zueinander) können aber durchaus unterschiedlich sein.

Die erfundsgemäßes Vorrichtung ermöglicht es, die Zeit für den turbulenten Wirbelzerfall bei der Vermischung im wesentlichen einzusparen und dadurch den Vermischungsvorgang wesentlich zu beschleunigen. Durch das Zerteilen der Eduktströme in dünne Fluidlamellen der Dicke d innerhalb der Mikrostruktur, ohne daß die Eduktströme miteinander in Kontakt geraten, und durch die homogene Verteilung der Edukte am Austritt aus der Mikrostruktur wird das Vermischungsverhalten von nahezu einem idealen Rohrreaktor eingesetzt. Bei schnellen Reaktionen treten unerwünschte Neben- bzw. Folgeprodukte in wesentlich geringerem Maße auf als bei Mischem nach dem Stand der Technik. Eine Hauptanwendung sind daher schnelle Reaktionen, die charakteristische Reaktionszeiten $< 1 \text{ s}$ und insbesondere $< 1 \text{ s}$ aufweisen. Unter "Reaktionszeit" wird üblicherweise die Halbwertszeit verstanden, d. h. die

Zeit nach dem Reaktionsbeginn, nach der die Eduktkonzentration auf den halben Wert abgesunken ist.

Als Vorrichtung hat sich ein statischer Mikrostruktur-Lamellenmischer mit wenigstens einer Mischkammer und einem vorgeschalteten Führungsbauteil für die Zufuhr von Misch- bzw. Reaktionsfluiden (Edukte) bewährt. Dabei ist das Führungsbauteil aus mehreren plattenartigen, übereinander geschichteten Elementen zusammengesetzt, die von schräg zur Mikromischer-Längsachse verlaufenden Mikrokanälen durchzogen sind, wobei sich die Kanäle benachbarter Elemente berührungslos kreuzen und in die Mischkammer einmünden. Diese Vorrichtung ist erfundsgemäß durch folgende Merkmale gekennzeichnet:

a) Die plattenartigen Elemente bestehen aus dünnen Folien, in die jeweils einzelne bzw. eine Schar eng benachbarter, mit abwechselnder Schräglage zur Mikrovermischer-Längsachse verlaufender schlitzförmiger Mikroschlitzkanäle eingearbeitet ist, so daß beim Übereinanderschichten der Folien je eine Reihe geschlossener Kanäle für die Führung der zu mischenden Fluide (Edukte A, B) entsteht.

b) Die Mikroschlitzkanäle haben eine Tiefe $d < 1000 \mu\text{m}$, vorzugsweise $< 100 \mu\text{m}$, bei Wanddicken der Zwischenstege und Kanalböden von $< 1000 \mu\text{m}$, vorzugsweise $< 100 \mu\text{m}$ und eine Breite, die mindestens das 10-fache, vorzugsweise das 20-fache der Tiefe d beträgt.

c) Die Mikroschlitzkanäle benachbarter Folien divergieren zur Fluideintrittsseite des Mikrovermischers hin derart, daß die zu vermischenden Fluide (Edukte A, B) getrennt einspeisbar sind.

35 Zur Verbesserung der mechanischen Stabilität können senkrecht zu den Kanalböden Stifte oder Stege angebracht werden, die mit den Kanalböden fest verbunden sind und sie gegeneinander abstützen.

Alternativ ist zwischen je zwei Folien mit den schrägen, zur Fluideintrittsseite divergierenden Mikroschlitzkanälen eine Zwischenfolie geschaltet, die senkrecht zur Mikrovermischer-Längsachse verlaufende Mikroschlitzkanäle aufweist und zur Durchleitung eines Kühl- oder Heizmittels dient.

45 Gemäß einer weiteren Alternative ist an die Mischkammer ein Mikrowärmetaübertrager angeschlossen. Die Mischkammer kann aber auch selbst als Mikrowärmetaübertrager ausgebildet sein, der unmittelbar an das Führungsbauteil angeschlossen ist.

Mit der erfundsgemäßes Vorrichtung werden die zu vermischenden Fluide reihenweise und "auf Lücke" in dünne, benachbarte Fluidlamellen unterteilt, die, beim Eintritt in die Mischkammer zusammengeführt, ein gemeinsames, entsprechend eng begrenztes Volumen ausfüllen und sich dadurch auf schnellstem und kürzestem Weg durchmischen können. Die Ausbildung extrem dünner Fluidlamellen erlaubt es, daß über eine Höhe von 1 cm einige hundert bis tausend Lamellen über- oder nebeneinander liegen, und diese Fluidlamellen 55 wechselweise durch Edukt A bzw. Edukt B gespeist werden.

60 Die erfundsgemäßes Vorrichtung ermöglicht die Mischung zweier oder mehrerer Fluide. Wenn chemisch miteinander reagierende Fluide (Edukte) vermischt werden, können die dabei auftretende (exotherme Reaktionen) oder benötigte (endotherrne Reaktionen) Reaktionswärme durch den angeschlossenen Mikrowärmetaübertrager abgeleitet oder zugeführt werden.

Bei Verwendung der erfundungsgemäßen Vorrichtung können folgende weitere Vorteile erzielt werden:

- Verbesserung von Ausbeute, Selektivität und Produktqualität bei bekannten Reaktionen
- Herstellung von Produkten mit neuen Eigenschaftsprofilen (z. B. höhere Reinheiten)
- Miniaturisierung von Reaktoren und Mischern, ggf. in Kombination mit Wärmetauschern
- Verbesserung des Sicherheitsstandards bei exothermen Reaktionen durch Verringerung des Hold-Up's und ggf. durch Verringerung der Abmessungen der Mikroschlitzkanäle unterhalb des Löschabstands (verbesserte Zündruckschlagsicherung!)
- Durch die schlitzförmige Gestaltung der Mikrokanäle (Kanalbreite $b >$ Kanaltiefe d) wird die Kontaktfläche zwischen Fluid und Kanalwand minimiert. Dies führt beim Mikrostruktur-Lamellenmischer, insbesondere bei einer Kanaltiefe $d < 100 \mu\text{m}$, zu deutlich geringeren Reibungsdruckverlusten als in einem Mikrostruktur-Mischer, bei dem die Breite b der Mikroschlitzkanäle in der Größenordnung der Tiefe d liegt (annähernd quadratischer Querschnitt).
- Durch die Erzeugung von Fluidlamellen in der erfundungsgemäßen Vorrichtung anstelle einer größeren Anzahl durch Zwischenwände getrennter Fluidfäden wird die Rückvermischung, die im Zwischenraumbereich zwischen den einzelnen Fluidfäden unmittelbar bei ihrem Eintritt in den Mischraum aufgrund lokaler Wirbel an den Mündungen auftreten kann und damit die Nebenproduktbildung reduziert.
- Weiterhin ist die Gefahr von Verstopfungen gegenüber dem Mikromischer mit vielen, annähernd quadratischen Mikrokanälen deutlich verringert.

Im folgenden wird die Erfindung anhand von Ausführungsbeispielen und Zeichnungen näher erläutert. Es zeigen

Fig. 1 die Vermischung zweier Edukte A,B in einem Glatstrahlmischer bzw. Rohreaktor (Stand der Technik)

Fig. 2 die schematische Darstellung von übereinander liegenden Fluidlamellen

Fig. 3 den prinzipiellen Aufbau einer bevorzugten Ausführungsform des Mikrostruktur-Lamellenmischers für zwei Edukte A, B mit symmetrischen Strömungswege

Fig. 4 die Vermischung der aus dem Mikrostruktur-Lamellenmischer in den Misch- bzw. Reaktionsraum eintretenden, den Edukten A, B zugeordneten Fluidlamellen,

Fig. 5a und 5b eine Ausführungsform, bei der die räumliche Anordnung der den Edukten A, B zugeordneten Fluidlamellen beim Eintritt in den Misch-/Reaktionsraum durch abwechselnd übereinanderliegende bzw. nebeneinanderliegende Schichten charakterisiert ist.

Fig. 6 ein Fließschema für eine Apparatur zur Untersuchung chemischer Reaktionen, die unter Einsatz der erfundungsgemäßen Vorrichtung ablaufen

Fig. 7 Ergebnisse bei der Azokupplungsreaktion von α -Naphthol mit 4-Sulfonsäurebenzoldiazoniumsalz bei dem Einsatz eines Mikrostruktur-Lamellenmischers, im Vergleich zu einem Mikrostruktur-Mischer mit annähernd quadratischem Kanalquerschnitt und zu einem konventionellen und Glatstrahldüsenreaktor

Fig. 8a mehrere, zu stapeindende Folien als Bauelemente

für den Mikrostruktur-Lamellenmischer mit jeweils einem Mikroschlitzkanal pro Folie

Fig. 8b und 8c zwei Ansichten eines Führungsbauteils aus Folien gem. Fig. 8a

Fig. 8d schematisch den Strömungsverlauf in einem Mikrostruktur-Lamellenmischer

Fig. 9a und 9b schematisch einen Mikrostruktur-Lamellenmischer mit kühl- oder heizbarem Führungsbauteil

Fig. 10a einen Schnitt durch einen Mikrostruktur-Lamellenmischer, an dessen Mischkammer ein Wärmeübertrager angeschlossen ist

Fig. 10b einen Mikrostruktur-Lamellenmischer mit einer als Wärmeübertrager ausgebildeten Mischkammer.

Gemäß Fig. 1 werden einem Glatstrahlmischer bzw. Glatstrahldüsenreaktor nach dem Stand der Technik zwei miteinander reagierende Edukte A,B zugeführt. Dabei wird hier das Edukt B in den durch den konzentrischen Ringraum zwischen der Düse und der Reaktorwand zugeführten Eduktstrom A mit einer unterschiedlichen Strömungsgeschwindigkeit eingedüst. Es kommt zu einer intensiven Vermischung (Wirbelbildung) und zum sofortigen Einsatz der chemischen Reaktion zwischen den Edukten bzw. Reaktanden A, B.

Fig. 2 zeigt das der Erfahrung zugrunde liegende Prinzip der alternierend übereinander geschichteten Fluidlamellen. Auf eine aus dem Fluid A bestehende Lamelle folgt jeweils eine Lamelle aus dem Fluid B. Dabei ist die Dicke d der Lamellen klein gegenüber ihrer Breite b . Die Fluide A, B können aus einem Gas oder einer Flüssigkeit bestehen und werden im folgenden als Edukte A, B bezeichnet.

In Fig. 3 ist eine der erfundungsgemäßen Vorrichtung entsprechende Ausführung eines Mikrostruktur-Lamellenmischers bzw. -reaktors schematisch dargestellt. Das Bauprinzip dieses Mischers/Reaktors beruht darauf, daß verschiedene Lagen der Platten mit schräg verlaufenden Mikroschlitzkanälen vertikal übereinander in Sandwichbauweise gestapelt sind.

Auf eine Platte mit den Mikroschlitzkanälen 1a folgt jeweils eine Platte mit den Mikroschlitzkanälen 1b, d. h. zwei im Stapel unmittelbar übereinander angeordnete Platten sind jeweils mit einer Schar von Mikroschlitzkanälen 1a, 1b versehen, wobei die Mikroschlitzkanalscharen aufeinanderfolgender Platten einen Winkel α miteinander bilden und symmetrisch zur Horizontalachse in Fig. 3, d. h. spiegelbildlich zueinander angeordnet sind. Die Platten haben z. B. eine Dicke von $100 \mu\text{m}$. Die Schlitzkanäle haben z. B. eine Tiefe d von $70 \mu\text{m}$ und eine Breite $b > 700 \mu\text{m}$.

Die in Fig. 3 von der Bildmitte aus gesehen schräg nach oben verlaufenden Scharen von Mikroschlitzkanälen 1a münden linksseitig in eine Verteilkammer 3a, der ein Reaktand oder Edukt A zugeführt werden kann. Analog münden die schräg nach unten verlaufenden Scharen der Mikroschlitzkanäle 1b linksseitig in eine Verteilkammer 3b, der ein Edukt B (Reaktand) zugeführt werden kann. Beide Scharen von Mikroschlitzkanälen münden rechtsseitig, ohne sich zu durchkreuzen, in einen gemeinsamen Misch-/Reaktionsraum 4 ein. Die spiegelsymmetrische Anordnung der Mikroschlitzkanäle 1a, 1b ist nicht zwingend erforderlich. Die Mikroschlitzkanäle 1b können z. B. auch eine andere Neigung gegen die Horizontalachse haben als die Mikroschlitzkanäle 1a.

Wichtig ist jedoch, daß die Mikroschlitzkanäle einer Schar jeweils strömungstechnisch untereinander gleich

sind, d. h. daß die Mikroschlitzkanäle 1a alle den gleichen Strömungswiderstand besitzen. Die gleiche Bedingung gilt für den Strömungswiderstand der Mikroschlitzkanäle 1b, wobei aber die Strömungswiderstände der beiden Mikrokanalscharen 1a, 1b (im Verhältnis zueinander) unterschiedlich sein können. Gleicher Strömungswiderstand kann dadurch erreicht werden, daß die Länge und der Querschnitt für alle Mikroschlitzkanäle 1a gleich sind.

Das einer Verteilerkammer 3a, 3b zugeführte Edukt, z. B. ein gasförmiger Reaktand, verteilt sich jeweils auf die Mikroschlitzkanäle 1a, 1b. Die Zusammenführung der beiden Reaktanden erfolgt beim Eintritt in den Misch-/Reaktionsraum und wird im Folgenden anhand der Fig. 4 und 5 näher beschrieben. In Fig. 4 ist der Mündungsquerschnitt des Mikrostruktur-Lamellenmischers perspektivisch dargestellt.

In der obersten Lage oder Platte münden z. B. die dem Edukt A zugeordneten Mikroschlitzkanäle 1a und in der darauffolgenden darunterliegenden Lage oder Platte die Mikroschlitzkanäle 1b des Eduktes B in den Misch-/Reaktionsraum ein. Darauf folgt wieder eine Lage oder Platte mit den zum Edukt A gehörenden Mikroschlitzkanälen usw.. In Fig. 4 ist auch schematisch dargestellt, wie die in den Mikroschlitzkanälen geführten Fluidströme als Fluidlamellen 6a, 6b in den Misch/Reaktionsraum eintreten und sich mit zunehmender Entfernung von der Mündung untereinander vermischen. Die Mischung erfolgt dabei durch Diffusion und/oder Turbulenz, während in den Mikroschlitzkanälen in der Regel laminare Strömungsbedingungen vorherrschen. Gleichzeitig mit der Mischung setzt auch die Reaktion der Edukte A, B ein. Das Reaktionsprodukt wird am Ende des Misch/Reaktionsraums abgenommen (s. Fig. 3). In Fig. 5 ist noch einmal gezeigt, in welcher räumlichen Reihenfolge die Edukte A, B am Mündungsquerschnitt in den Misch/Reaktionsraum eintreffen. Eine Schicht mit Fluidlamellen des Eduktes A grenzt also jeweils an eine Schicht der Fluidlamellen des Eduktes B an. Die Anordnung kann natürlich auch um 90° gedreht werden, so daß die Schichten nebeneinander liegen.

Der Mikrostruktur-Lamellenmischer gemäß Fig. 3 kann auch in der Weise modifiziert werden, daß drei oder mehr Edukte in jeweils getrennte Scharen von Mikroschlitzkanälen aufgeteilt werden, die dann im Misch-/Reaktionsraum zusammengeführt werden. Eine verfahrenstechnisch interessante Variante besteht darin, daß das dritte Edukt aus einem temperierten inerten Fluid besteht. Die Fluidlamellen werden dann im Mikrostruktur-Lamellenmischer so geführt, daß in Nachbarschaft zu einer Fluidlamelle eines Eduktes eine Fluidlamelle des temperierten inerten Fluids zu Heiz- oder Kühlzwecken in den Misch/Reaktionsraum eingespeist wird.

Nachfolgend wird anhand der Fig. 8a bis 10b eine praktische Ausführung des Mikrostruktur-Lamellenmischers beschrieben, die sich besonders bewährt hat.

Die Folien 1 bzw. 2 gemäß Fig. 8a haben eine Dicke von 100 µm. Die Foliensorte 1 ist von einem bzw. einer Schar vorzugsweise paralleler, eng benachbarter und schräg zur Vermischerlängsachse 3 verlaufender Mikroschlitzkanäle durchzogen, die von hinten links beginnend gegenüber dieser Achse 3 einen spitzen Winkel $+ \alpha$ haben und im mittleren Bereich der vorderen Folienlängsseite münden. Dargestellt ist in Abb. 8a eine Ausführung mit jeweils einem Mikroschlitzkanal pro Folie. Die Foliensorte 2 ist in derselben Art und Weise von einem Mikroschlitzkanal 1b durchzogen; jedoch be-

trägt hier der Winkel zwischen Nutenlängsachse und Vermischerlängsachse $- \alpha$; d. h. der Mikroschlitzkanal 1b verläuft von rechts hinten zum mittleren Bereich der vorderen Folienlängsseite. Der Betrag des Winkels muß jedoch nicht der gleiche sein. Die Mikroschlitzkanäle 1a, 1b können z. B. mit Formdiamanten eingearbeitet werden und haben vorzugsweise eine Breite b > 700 µm und eine Tiefe d von 70 µm. Die Stärke der Kanalböden 5a, 5b beträgt 30 µm.

Im Fall breiter Mikroschlitzkanäle kann es zweckmäßig sein, die Folien bzw. die Kanalböden 5a, 5b durch senkrecht angeordnete, durchgehende Stifte 15 oder Stege mit kleinen Querabmessungen, die an den Kanalböden angeschweißt werden, gegeneinander abzustützen. Auf diese Weise können die Mikroschlitzkanäle 1a, 1b ohne Beeinträchtigung der mechanischen Stabilität beliebig breit ausgeführt werden.

Abb. 8b und 8c zeigen, wie für die Herstellung eines Führungsbauteils 6 die Foliensorten 1 und 2 abwechselnd übereinander geschichtet, mit einer oberen und einer unteren Deckplatte 7a, 7b versehen und z. B. mittels Diffusionsschweißen zu einem homogenen, vakuumdichten und druckfesten Mikrostrukturkörper verbunden werden.

Diese Mikroschlitzkanäle 1a, 1b bilden einen gemeinsamen, z. B. quadratischen Querschnitt aufweisenden Block mit einer Dichte von einigen zehn bis einigen hundert Mündungen pro cm², die an die gemeinsame Mischkammer 4 angrenzen. Fig. 8c zeigt das Führungsbauteil 6 von der Zuströmseite der Fluide A und B aus gesehen. Wie hieraus und aus der Draufsicht gemäß Fig. 8d zu ersehen ist, divergieren die zur Längsachse 3 schräg verlaufenden Kanäle 1a, 1b von der Mischkammer 4 aus abwechselnd zur Fluideintrittsseite hin so, daß die Fluide A und B über je eine Eintrittskammer oder Verteilerkammer 3a und 3b getrennt dem Führungsbauteil 6 zugeführt werden können. Nach dem Austritt aus dem Führungsbauteil 6 werden die feinen Fluidlamellen 6a, 6b der Fluide A und B innig miteinander vermischt und bilden in der Mischkammer 4 eine gemeinsame Strömung C (siehe auch Fig. 4).

Die Fig. 9a und 9b zeigen eine Variante, bei der zwischen zwei Foliensorten 1 und 2 bzw. zwischen die Folien und die Deckplatten 7a, 7b Zwischenfolien 8 geschaltet sind, die senkrecht zur Längsachse 3 verlaufende Mikroschlitzkanäle 9 aufweisen zur Durchleitung eines Kühl- oder Heizmittels. Dadurch kann die Vermischungszeit und die Reaktionsgeschwindigkeit der Fluide A und B beeinflußt werden.

In Fig. 10a ist ein Führungsbauteil 6 entsprechend den Fig. 8a bis 8d im Schnitt dargestellt mit angeschlossener Mischkammer 4. An diese Mischkammer ist ein Wärmeübertrager 10 angeschlossen, der ähnlich wie bei der Variante gemäß Fig. 9a und 9b von quer zur Strömungsrichtung C verlaufenden Kanälen 11a durchzogen ist zur Ab- bzw. Zufuhr der Reaktionswärme aus bzw. zu den Kanälen 11b.

In Fig. 10b ist der Wärmeübertrager 12 direkt an das Führungsbauteil 13 angeschlossen. Dabei ist die Anordnung durch Distanzfolien 14 so getroffen, daß je zwei übereinanderliegende Kanäle 13a, 13b für die Fluide A, B je in einen gemeinsamen Teilmischraum 12a des Wärmeübertragers ausmünden, wobei diese Teilmischräume 12a an Folien 12b angrenzen, die quer zur Strömungsrichtung C verlaufende Kanäle 12c aufweisen. Diese Kanäle 12c führen ein Kühl- oder Heizmittel, mit dem bezüglich der Misch- und Reaktionszonen 12a Wärme ab- oder zugeführt werden kann.

Beispiel

Zur Beurteilung des Vermischungsverhaltens verschiedenster Vermischer-Vorrichtungen wird in der Literatur die Azokupplungsreaktion von α -Naphthol mit 4-Sulfonäbenzoldiazoniumsalz eingesetzt [2, 8, 9]. Diese Reaktion entspricht einem Reaktionsschema, bestehend aus der gewünschten Hauptreaktion und einer unerwünschten konkurrierenden Folgereaktion, in der das über die Hauptreaktion gebildete Produkt mit unreagiertem Edukt zu einem unerwünschten Folgeprodukt reagiert. Das Folgeprodukt kann auf einfache Weise mit Hilfe von Absorptionsspektren analysiert werden. Die Güte des Mischvorganges wird dabei durch die Selektivität des unerwünschten Folgeproduktes S , X_S , beurteilt. Je mehr S gebildet wird, desto schlechter ist die Vermischung.

Die Untersuchungen zur Durchführung schneller chemischer Reaktionen mittels Mikrostruktur-Mischung erfolgten in der in Fig. 6 dargestellten Apparatur. Sie besteht aus den Vorlagebehältern 5 für die Ausgangskomponenten A und B, den Dosier- und Regelvorrichtungen 6, Filtern 7 zum Schutz des Mikrostruktur-Mischers vor Verstopfungen, dem Mikrostruktur-Mischer 8 und dem Auffangbehälter 9 für das Produktgemisch. Der Mikrostruktur-Lamellenmischer verfügt über Schlitzkanäle mit einer Tiefe d von $70 \mu\text{m}$ und einer Breite b von 4 mm . Der Mikrostruktur-Lamellenmischer wurde dabei mit einem Mikrostruktur-Mischer mit rechteckförmigen Mikrokanälen, die Freistrahlen der Breite $100 \mu\text{m}$ und der Dicke $70 \mu\text{m}$ erzeugen, verglichen. Weiterhin wurde eine konventionelle Glattrohdüse in den Vergleich einbezogen. Die Strahlen in den beiden Mikrostruktur-Mischern waren so angeordnet, daß die Komponenten A bzw. B in abwechselnd übereinander angeordneten Schichten aus dem Mischer austreten.

Es wurden Volumenstromverhältnisse von $\alpha = V_A/V_B$ von 10 eingestellt. Dabei wurde bei Leistungskennzahlen $\Psi > 10^2$ gearbeitet. Die reaktionskinetischen Daten und die Vorschrift für die Anwendung der Modellreaktionen sind der Literatur zu entnehmen [2, 8, 9, 10].

Vorgegeben wurde ein stöchiometrisches Verhältnis von 1,05 und eine konstante Naphthol-Ausgangskonzentration von $1,37 \text{ mol/m}^3$. Die Leistungskennzahl Ψ berechnet sich folgendermaßen:

$$\Psi = \frac{(\Delta p_{\text{Naph}} \cdot V_{\text{Naph}} + \Delta p_{\text{Sulf}} \cdot V_{\text{Sulf}})}{[k_2 \cdot c_{\text{A0}} \cdot \eta \cdot (V_{\text{Naph}} + V_{\text{Sulf}})]} /$$

mit

Δp_{Naph} Stoßverlust Naphthol-Lösung im Mischer
 Δp_{Sulf} Stoßverlust Sulfanilsäure-Lösung im Mischer
 V_{Naph} Volumenstrom Naphthol-Lösung
 V_{Sulf} Volumenstrom Sulfanilsäure-Lösung
 k_2 Reaktionsgeschwindigkeitskonstante d. unerwünschten Folgereaktion
 c_{A0} Ausgangskonzentration Naphthol
 η dyn. Viskosität

In Fig. 7 ist die Selektivität des unerwünschten Folgeproduktes X_S gegen die Leistungskennzahl Ψ aufgetragen.

Es zeigt sich, daß für das Volumenstromverhältnis $\alpha = 10$ bei gleicher Leistungskennzahl bei Einsatz des Mikrostruktur-Lamellenmischers und Mikrostruktur-

Mischers wesentlich weniger unerwünschtes Folgeprodukt gebildet wird als bei Verwendung einer konventionellen Glattrohdüse. Dieser Befund ist völlig überraschend, wenn man von der bestehenden Lehrmeinung ausgeht, daß die Mischintensität allein durch die Leistungskennzahl und die Stoffdaten bestimmt wird. Dabei ist das Vermischungsverhalten des Mikrostruktur-Lamellenmischers etwa gleich dem des Mikrostruktur-Lamellenmischers, wobei wesentliche Vorteile des Mikrostruktur-Lamellenmischers darin bestehen, daß der Reibungsdruckverlust mindestens um einen Faktor 3 kleiner ist und eine geringere, durch Verwirbelung am Einfuß in den Misch-/Reaktionsraum bedingte Rückvermischung aufgrund einer geringeren Anzahl von Fluidelementen auftritt.

Literatur

- [1] Brodkey, R. S. (ed.)
- 20 Turbulence in Mixing Operations
Theory and Application to Mixing and Reaction
Academic Press, Inc., New York, San Francisco, London, 1975
- [2] Tebel, K. H.; May, H.-O.
Der Freistrahrlrohrreaktor – Ein effektives Reaktordesign zur Unterdrückung von Selektivitätsverlusten durch schnelle, unerwünschte Folgereaktionen
Chem.-Ing.-Tech. MS 1708/88, Synopse in Chem.-Ing.-Tech 60, 1988
- 30 [3] Zehner, P.; Bittins, K.
Düsenereaktoren
Fortschr. Verf. Technik 23, 1985, 373
- [4] Tosun, G.
A Study of Micromixing in T- Mixers
Ind. Eng. Chem. Res 26, 1987, 1184
- [5] Batchelor, G. K.
Small-scale Variation of Convected Quantities Like Temperature in Turbulent Fluid
J. Fluid Mech. 5, 1959, 113
- 40 [6] Baldyga, J.; Bourne, J. R.
Micromixing in Inhomogeneous Turbulence
Chem. Eng. Sci. 43, 1988, 107
- [7] Schmidt, P.; Caesar, C.
Mikroreaktor zur Durchführung chemischer Reaktionen mit starker Wärmetönung
und Offenlegungsschrift DE 39 26 466 A1
- [8] Brodkey, R. S.
Fundamentals of Turbulent Motion, Mixing and Kinetics
Chem. Eng. Commun. 8, 1981, 1
- 50 [9] Bourne, J. R.; Hilber, C.; Tovstiga, G.
Kinetics of the Azo Coupling Reactions Between 1-Naphthol and Diazotized Sulfanilic Acid; Chem. Eng. Commun. 37, 1985, 293
- 55 [10] Bourne, J. R.; Kozicki, F.; Rys, P.
Mixing and Fast Chemical Reaction I:
Test Reactions to Determine Segregation
Chem. Eng. Sci. 36, 1981, 1643
- 60 Patentansprüche
- 1. Verfahren zur Durchführung chemischer Reaktionen zwischen gasförmigen und/oder flüssigen Reaktionspartnern (Edukte), bei dem mindestens zwei Edukte A, B durch eine ihnen jeweils zugeordnete Schar von Mikrokanälen (in räumlich getrennte Mikroströme aufgeteilt werden, die anschließend in einen gemeinsamen Misch- und Reaktionsraum

austreten, dadurch gekennzeichnet, daß man die Mikroströme in Form von Fluidlamellen der Edukte A, B aus schlitzförmig ausgebildeten Mikrokanälen (1a, 1b) (Mikroschlitzkanäle) mit für das jeweilige Edukt gleichen Strömungsgeschwindigkeiten in den Misch-/Reaktionsraum (4) austreten läßt, wobei jede Fluidlamelle eines Eduktes A in unmittelbarer Nachbarschaft zu einer Fluidlamelle eines anderen Eduktes B in den Misch- und Reaktionsraum (4) geführt wird und sich die benachbarten 10 Fluidlamellen durch Diffusion und/oder Turbulenz miteinander vermischen.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß in den Mikroschlitzkanälen (1a, 1b) laminare Strömungsbedingungen für die Edukte A, 15 B aufrechterhalten werden.

3. Verfahren nach Anspruch 1 bis 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Fluidlamellen der Edukte A, B in abwechselnd übereinanderliegenden oder nebeneinanderliegenden dünnen Schichten in den Re- 20 aktionsraum (4) austreten.

4. Verfahren nach Anspruch 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Dicke der Fluidlamellen am Eintritt in den Misch-/Reaktionsraum (4) auf einen Wert zwischen 10 µm und 1000 µm, vorzugsweise 25 zwischen 10 µm und 100 µm eingestellt wird.

5. Verfahren nach Anspruch 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß in Nachbarschaft zu einer Fluidlamelle eines Eduktes zusätzlich eine Fluidlamelle eines temperierten Inertfluids in den Misch-/Reak- 30 tionsraum (4) eingespeist wird.

6. Mikrostruktur-Lamellenmischer mit wenigstens einer Mischkammer und einem vorgesetzten Führungsbauteil für die Zufuhr von zu mischenden Fluiden zu der Mischkammer, wobei das Führungs- 35 bauteil aus mehreren plattenartigen, übereinander geschichteten Elementen zusammengesetzt ist, die von schräg zur Mikro-Vermischer-Längsachse verlaufenden Kanälen durchzogen sind, und wobei die Kanäle benachbarter Elemente sich berührungslos 40 kreuzen und in die Mischkammer ausmünden, gekennzeichnet durch folgende Merkmale:

a) die plattenartigen Elemente bestehen aus dünnen Folien (1, 2), in die je ein einzelner bzw. eine Schar benachbarter, mit abwechselnder 45 Schräglage zur Mikro-Vermischer-Längsachse (3) verlaufender schlitzförmiger Mikroschlitzkanäle (1a, 1b) eingearbeitet ist, so daß beim Übereinanderschichten der Folien (1, 2) je ein einzelner bzw. eine Reihe (1a bzw. 1b) geschlossener Kanäle für die Führung der zu mi- 50 schrenden Fluide (A, B) entsteht;

b) die Mikroschlitzkanäle (1a, 1b) haben eine Tiefe d von < 1000 µm, vorzugsweise < 100 µm, eine Breite b, die mindestens das 55 10-fache der jeweils gewählten Tiefe d beträgt (d. h. b/d > = 10) und eine Wanddicke der Kanalböden (5a, 5b) von < 1000 µm, vorzugsweise < 100 µm;

c) die an die Mischkammer (4) angrenzenden 60 Mündungen der Kanäle (1a, 1b) liegen fluchtend übereinander, wobei die Kanäle (1a, 1b) benachbarter Folien zur Fluideintrittsseite (3a, 3b) des Mikrovermischers hin so divergieren, daß die zu vermischenden Fluide (A, B) ge- 65 trennt einspeisbar sind.

7. Mikrostruktur-Lamellenmischer nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Kanalböden

(5a, 5b) in regelmäßigen Abständen durch fest mit den Kanalböden (5a, 5b) verbundene Stifte (15) abgestützt sind.

8. Mikrostruktur-Lamellenmischer nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen je zwei Folien (1, 2) mit den schrägen, zur Fluideintrittsseite divergierenden Mikroschlitzkanälen eine Zwischenfolie (8) geschaltet ist, die senkrecht zur Mikro-Vermischer-Längsachse (3) verlaufende Mikroschlitzkanäle (9) aufweist zur Durchleitung eines Kühl- oder Heizmittels.

9. Mikrostruktur-Lamellenmischer nach Anspruch 6 oder 7, dadurch gekennzeichnet, daß an die Mischkammer (4) ein Mikrowärmeübertrager (10) angeschlossen ist.

10. Mikrostruktur-Lamellenmischer nach Anspruch 6 oder 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Mischkammer als Mikrowärmeübertrager ausgebildet ist, der unmittelbar an das Führungsbauteil (13) angeschlossen ist.

Hierzu 12 Seite(n) Zeichnungen

- Leerseite -

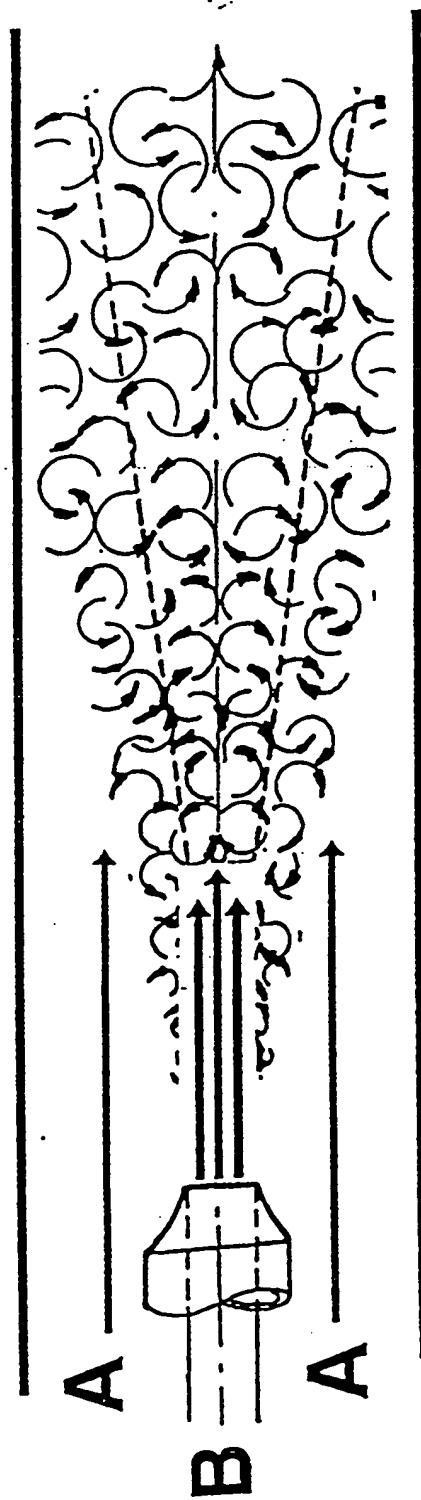


Fig. 1

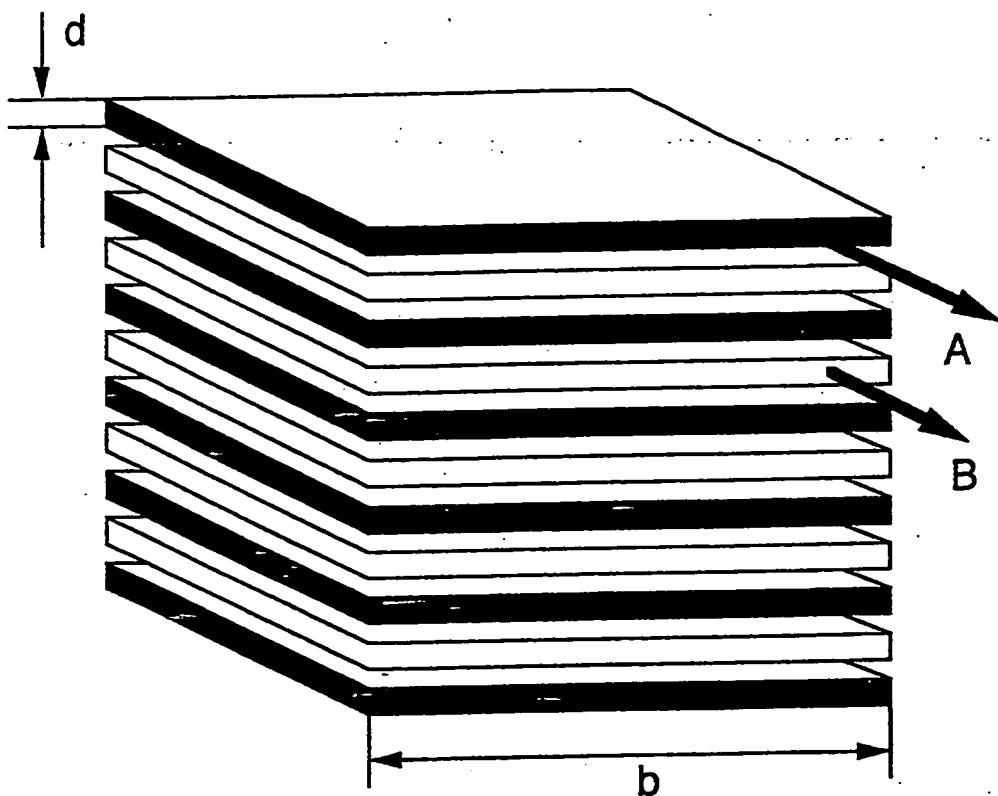


Fig. 2

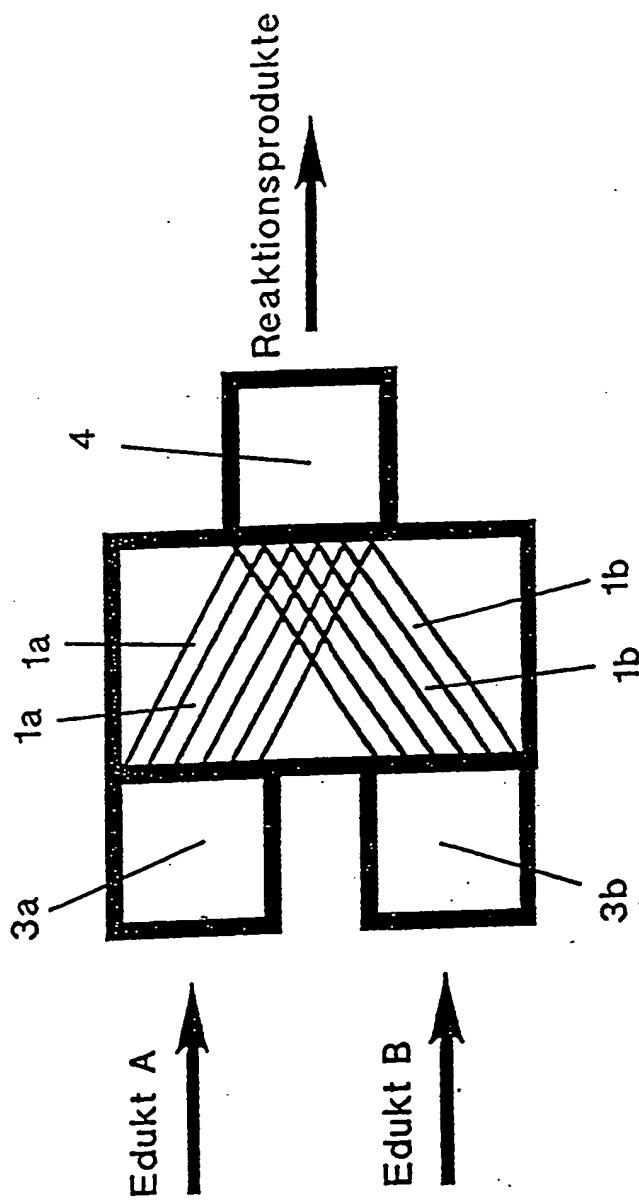


Fig. 3

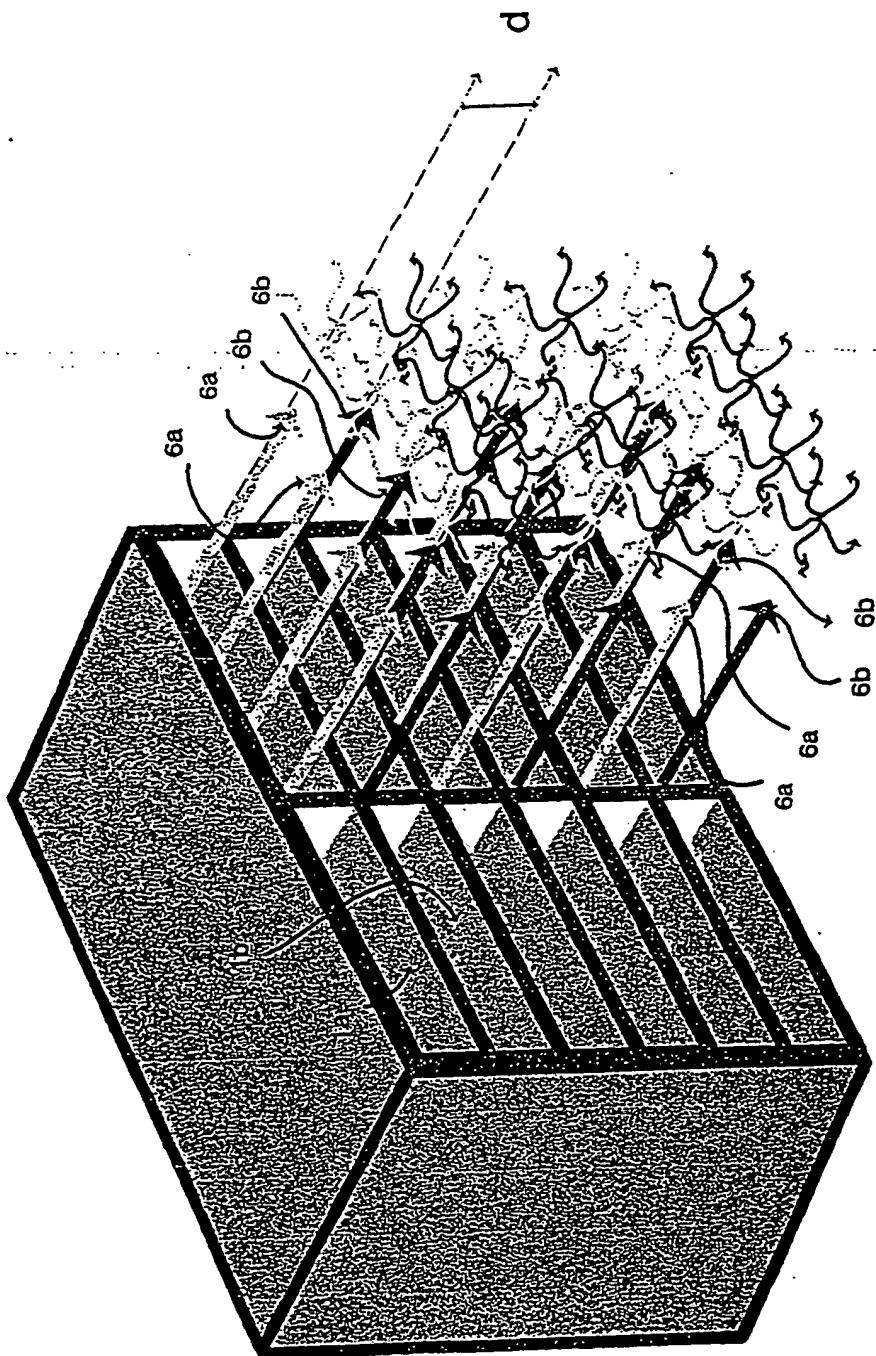


Fig. 4

AAAAAAA
BBBBBBB
AAAAAAA
BBBBBBB
AAAAAAA
BBBBBBB

Fig. 5a

A B A B A B
B A B A B A
A B A B A B
B A B A B A
A B A B A B
B A B A B A

Fig. 5b

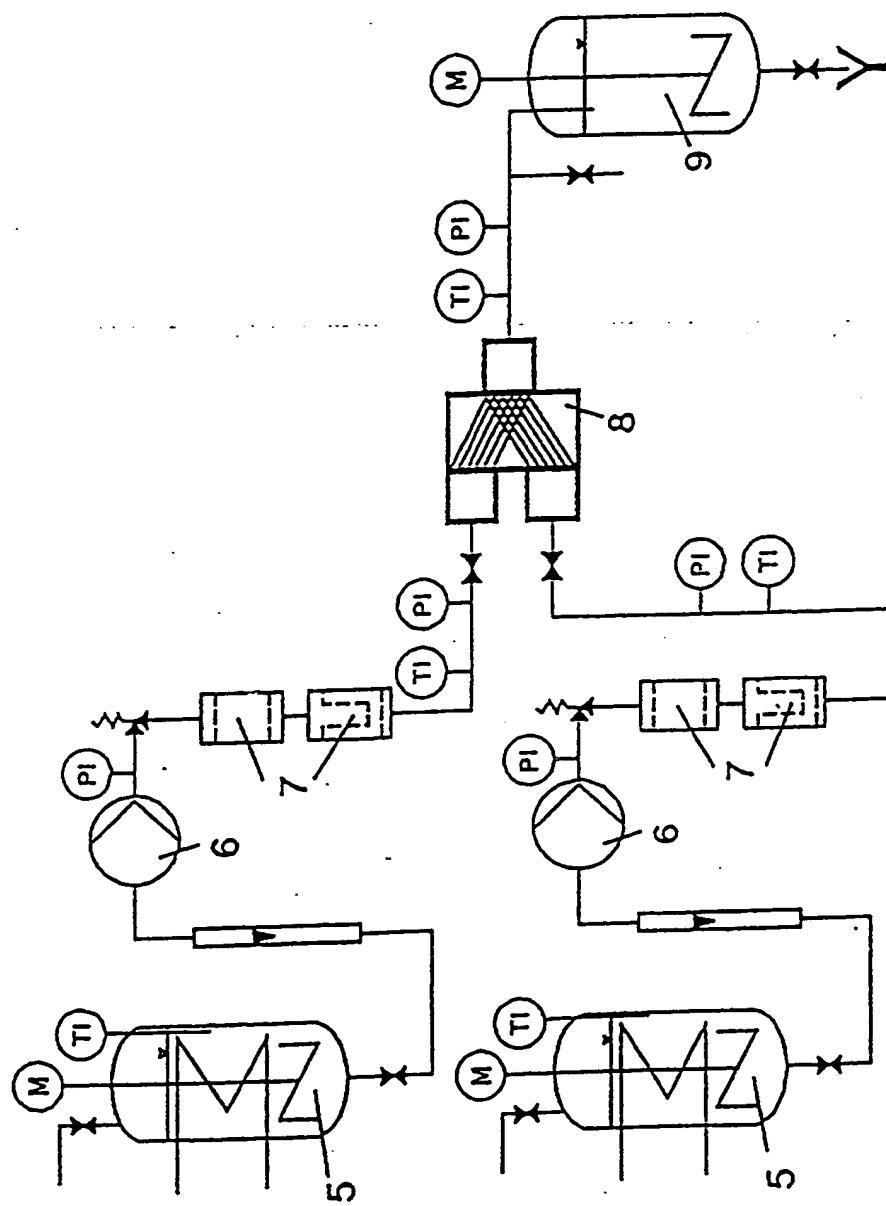


Fig. 6

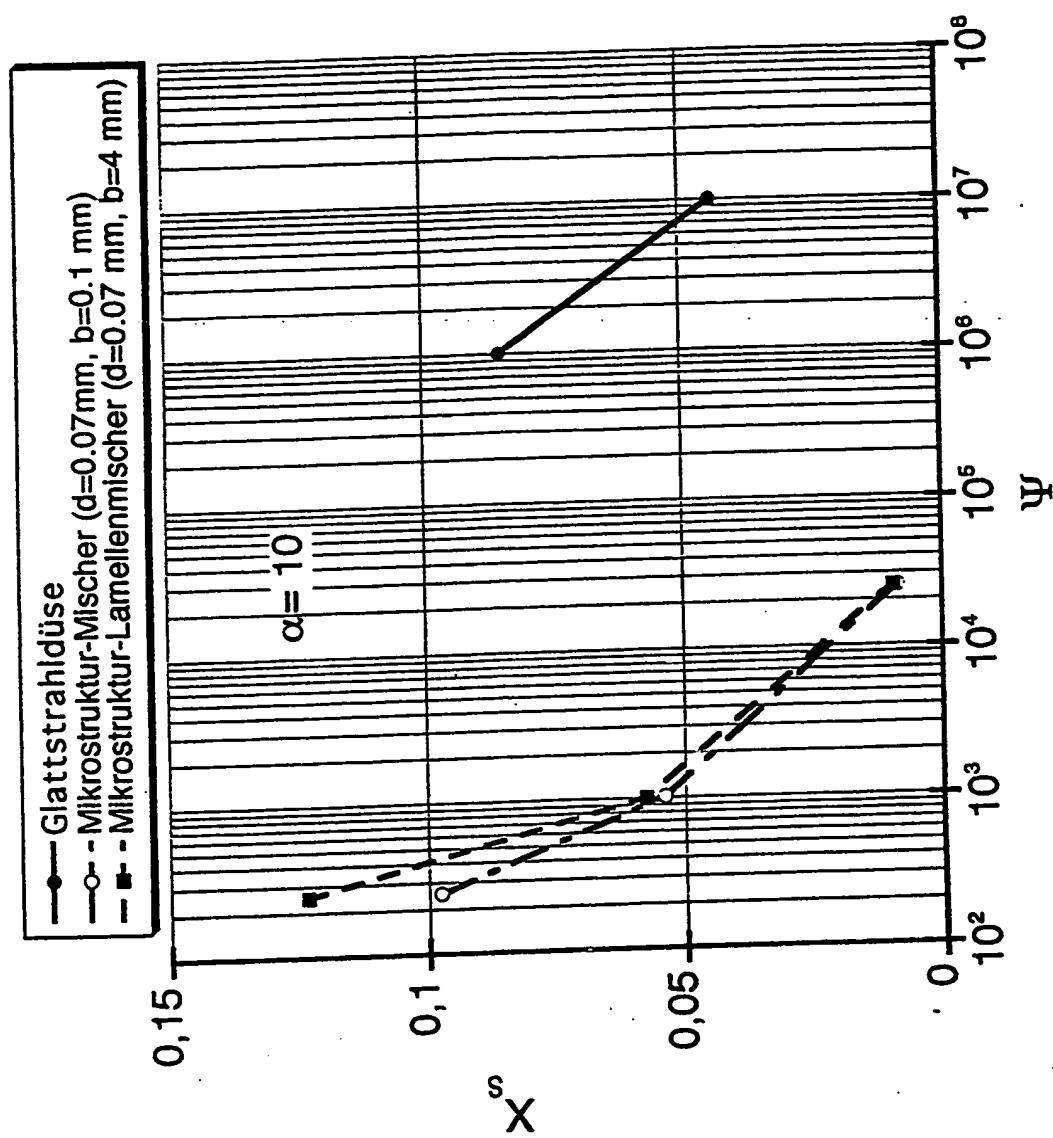


Fig. 7

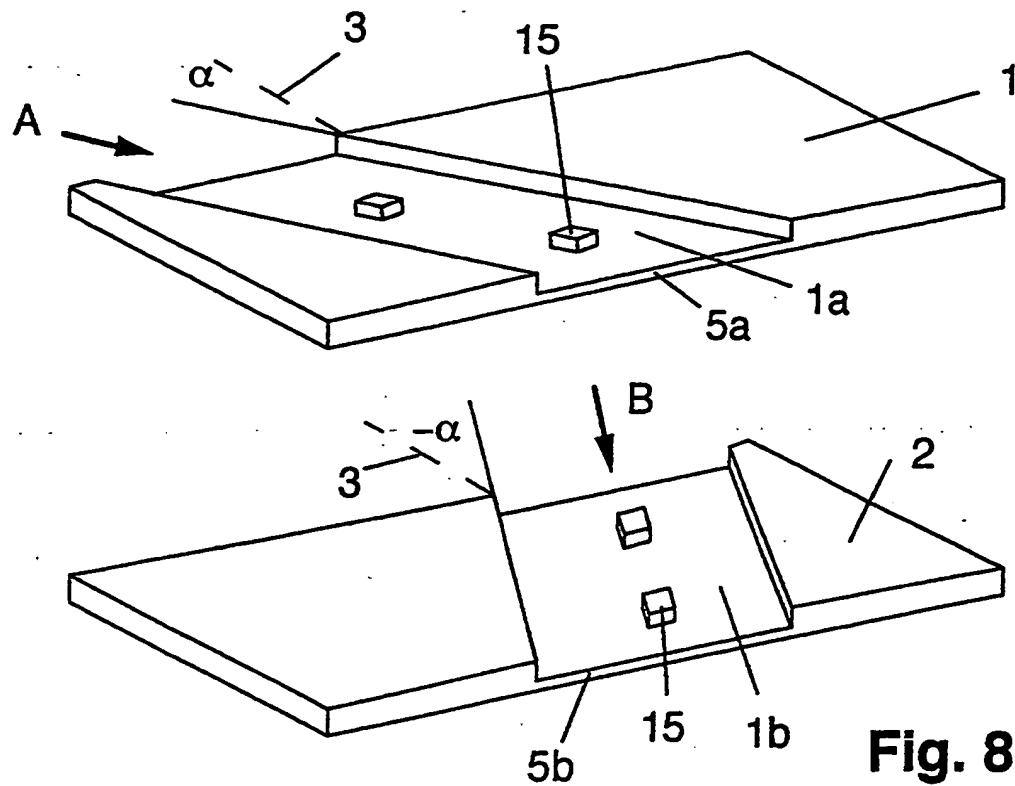
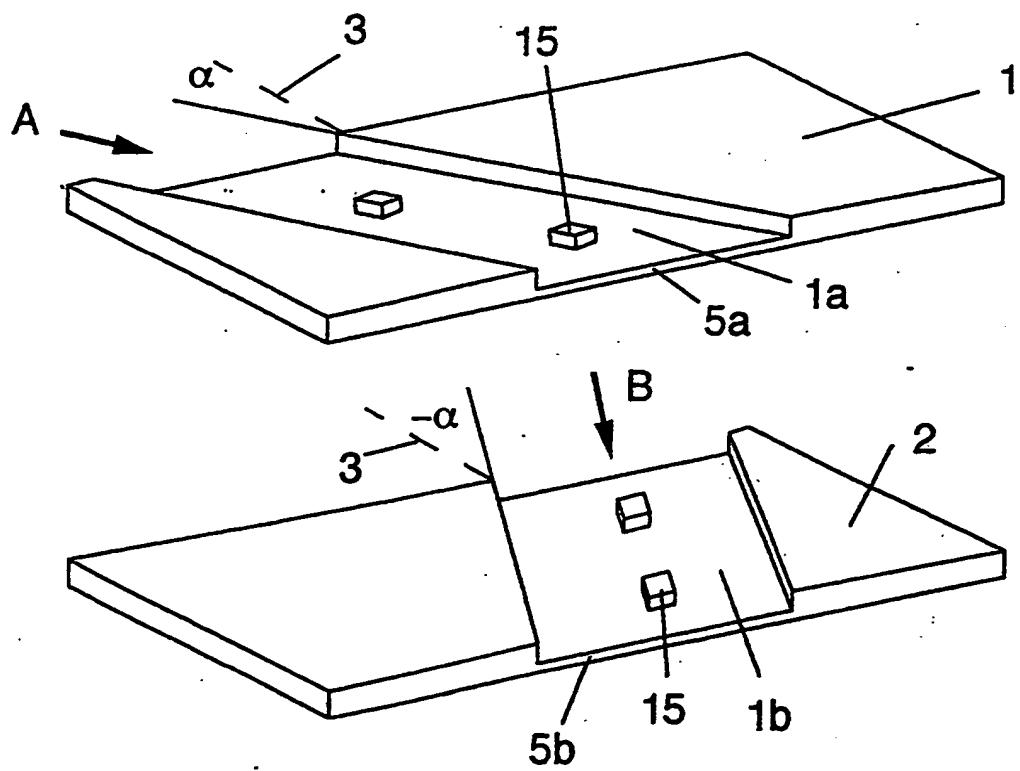
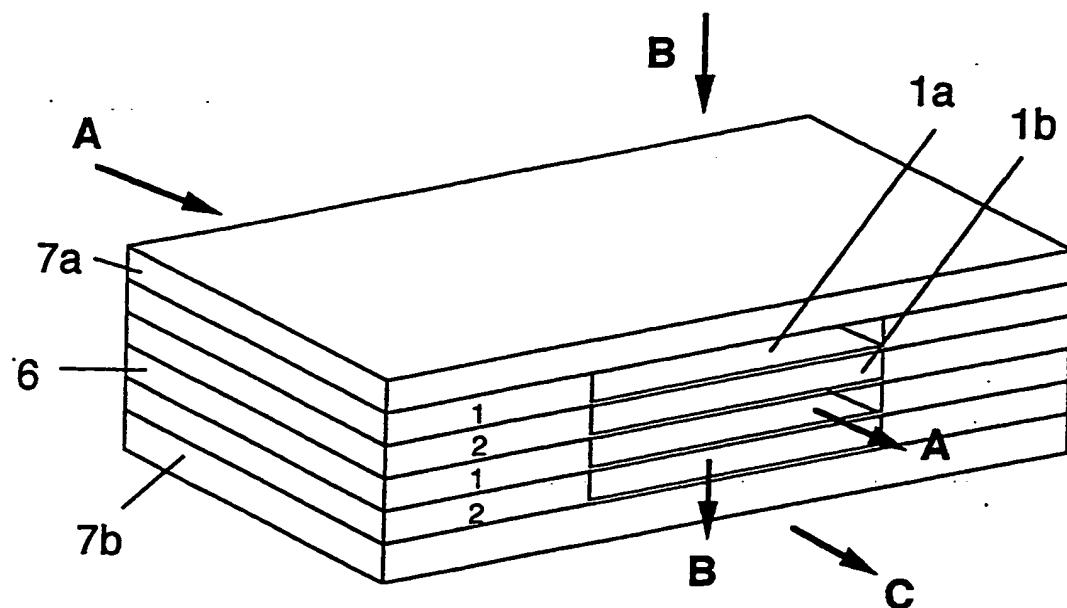
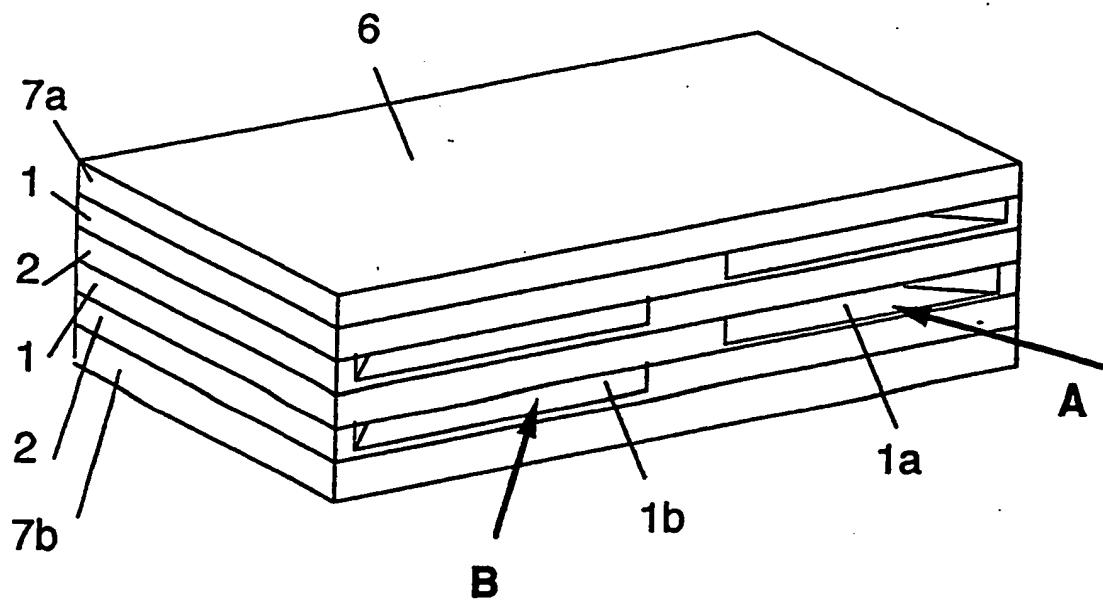


Fig. 8a



**Fig. 8b****Fig. 8c**

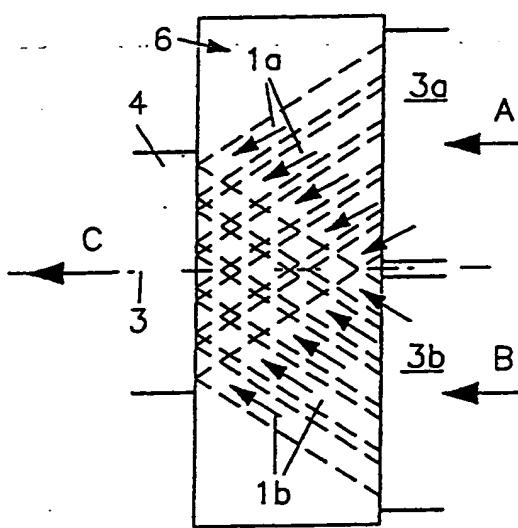


Fig. 8d

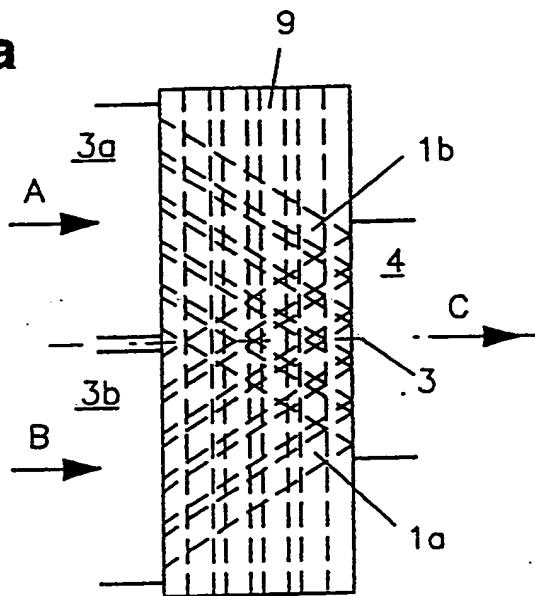
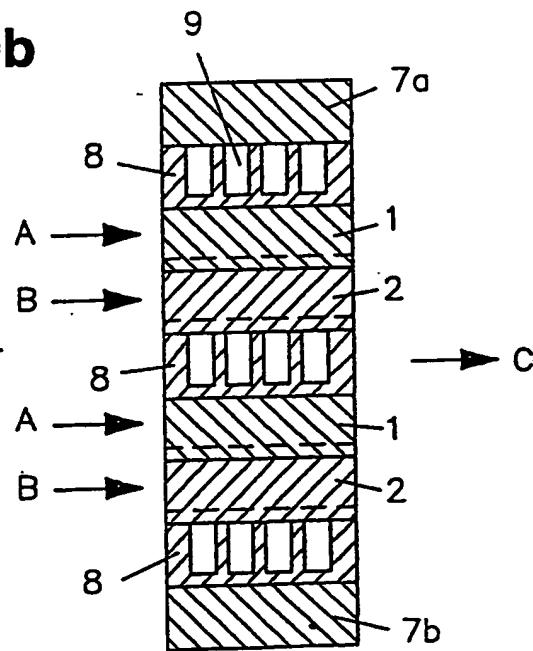
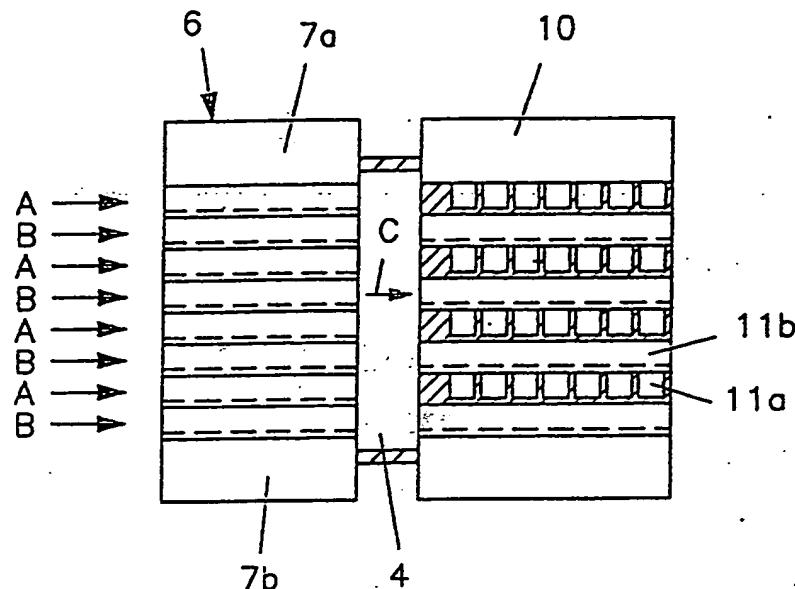
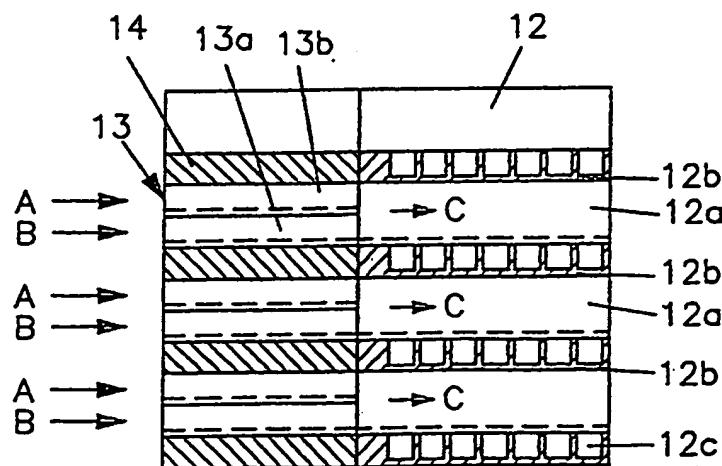
Fig. 9a**Fig. 9b**

Fig. 10a**Fig. 10b**

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER: _____**

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.